

THÈSE DE DOCTORAT
Spécialité : Sciences Physiques

présentée par

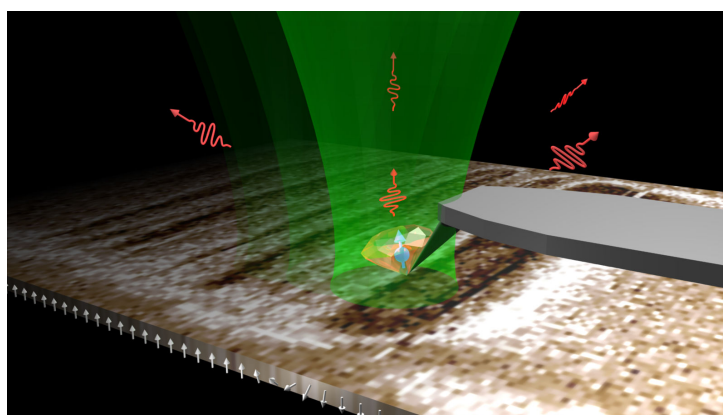
Jean-Philippe TETIENNE

pour obtenir le grade de

Docteur de L'École Normale Supérieure de Cachan

Sujet :

UN MICROSCOPE DE CHAMP MAGNÉTIQUE BASÉ SUR LE DÉFAUT
AZOTE-LACUNE DU DIAMANT : RÉALISATION ET APPLICATION À
L'ÉTUDE DE COUCHES FERROMAGNÉTIQUES ULTRAMINCES



Thèse soutenue publiquement à Cachan
le 13 novembre 2014 devant le jury composé de :

M. Albert FERT	Président du jury
M. Russell COWBURN	Rapporteur
M. Jean-Jacques GREFFET	Rapporteur
M. Claude FERMON	Examineur
M. Vincent REPAIN	Examineur
M. Jean-François ROCH	Directeur de thèse
M. Vincent JACQUES	Encadrant

Remerciements

Ce manuscrit vient conclure mes trois années de thèse passées à l'École Normale Supérieure de Cachan, sous l'encadrement de Vincent Jacques. C'est donc Vincent que je souhaite remercier en premier lieu. Tout d'abord, un grand merci pour m'avoir proposé ce sujet ambitieux et prometteur. Je me souviens encore de tes explications au tableau noir qui m'ont immédiatement séduites, c'était à l'automne 2010. Depuis que j'ai rejoint l'équipe "magnétométrie" en mars 2011, nous avons eu la chance de bénéficier de ta disponibilité quasi-quotidienne, ton rythme de travail extrêmement soutenu, ton enthousiasme communicatif, ton sens de la rigueur et de l'efficacité, ainsi que ton flair scientifique, savant mélange entre ambition et réalisme. C'est en grande partie grâce à ces qualités que nous avons été si prolifiques, Loïc, Thomas et moi, le tout dans une atmosphère amicale et coopérative que tu contribues à maintenir. Je ne compte pas le nombre de fois où nous discussions ensemble dès le matin des résultats que tu recevais la veille au soir, et où tu nous faisais part de ton excitation et nous indiquais la marche à suivre. J'ai également apprécié que tu passes autant de temps à nous aider à perfectionner nos présentations orales. Les règles et astuces que tu nous as apprises à ces occasions me serviront sans aucun doute à l'avenir. Enfin, je te remercie sincèrement pour ton aide dans la rédaction du manuscrit et la préparation de la soutenance, tu es pour beaucoup dans la qualité du résultat. Au-delà des projets encore en cours, je suis impatient de travailler à nouveau avec toi dans le futur.

Je remercie ensuite Jean-François Roch, mon directeur de thèse. Je n'ai pas eu la chance d'interagir autant avec toi qu'avec Vincent du fait de tes fonctions administratives, mais j'ai beaucoup apprécié ta présence et tes conseils à différentes étapes clefs de ma thèse, de la constitution du dossier de thèse jusqu'à la préparation de la soutenance. Je suis admiratif du travail que tu fournis pour faire du Laboratoire Aimé Cotton un lieu moderne et attirant, peut-être aurai-je un jour l'occasion d'en profiter. Enfin, je te remercie pour m'avoir offert la possibilité d'enseigner la mécanique quantique aux L3 phytem, j'ai pris beaucoup de plaisir lors des TD du lundi après-midi, et j'ai également beaucoup appris moi-même en les préparant.

Les résultats présentés dans ce mémoire sont aussi ceux de deux autres doctorants, Loïc Rondin jusqu'à l'automne 2012, puis Thomas Hingant ensuite. C'est Loïc qui m'a formé sur l'expérience attocube lorsque j'ai commencé, qu'il avait auparavant montée et apprise à dompter avec Piernicola Spinicelli, à l'époque post-doctorant dans le groupe. D'une certaine façon, le plus dur était alors déjà fait, et il ne nous restait plus, à Loïc et moi, qu'à maîtriser la fonctionnalisation de la pointe. Il s'en est suivi une année très fructueuse pendant laquelle nous avons imagé le disque dur, exploré l'imagerie par temps de vie, et enfin imagé les vortex. Que de bons souvenirs de cette période passée ensemble dans la salle de manip' : le premier nanodiamant (alias José) sur la pointe, le premier spectre ESR sur la pointe, la première image en iso-B du disque dur, la première image en quenching, la première image d'un vortex carré, la première image d'un quadri-vortex, la première image d'un cœur de vortex, etc. Loïc, j'ai adoré vivre ces moments avec toi, j'ai particulièrement apprécié ta motivation et ton enthousiasme infaillibles, ton travail

acharné notamment quand tu t'es attaqué aux simulations numériques des vortex, et la bonne humeur que tu répandais pendant les pauses déjeuner et café.

Est ensuite arrivé Thomas, digne successeur de Loïc. Ensemble, nous avons vécu une année pleine de surprises sur le microscope attocube “à chaud”. Cela a commencé avec la première image quantitative d'un cœur de vortex, puis les premières images de parois de domaine dans un film ultramince, les premières images de bulles, les premières images de parois dans des films structurés, et surtout l'observation des sauts de Barkhausen. Je me souviens de cette fameuse journée où l'on a mesuré les taux de transition : je te criais “stop” à chaque saut de la paroi, pendant que tu notais, chronomètre à la main, le temps écoulé depuis l'allumage du laser. Puis pendant cette dernière année, nous nous sommes attaqués ensemble au problème Bloch/Néel, avec les résultats que tu connais. Et même si tu consacrais déjà en parallèle une grosse partie de ton temps à l'accueil du nouveau venu, le microscope attocube “à froid”, ton travail et tes idées sur de nombreux aspects des expériences à chaud ont été déterminants, et serviront d'ailleurs aux utilisateurs du microscope pendant de nombreuses années (programmes Matlbab de fit des images quantitatives, de l'orientation du NV, des coupes de calibration, calculs analytiques du champ de fuite, méthode FFT, porte-échantillons, etc.). Un grand merci donc pour ton travail qui nous a permis d'avancer toujours vite et bien, le tout dans la bonne humeur. En outre, je te remercie chaleureusement pour ta gentillesse et ta discrétion pour l'organisation de l'évènement du 29 mars... Je te passe maintenant le témoin, et attends avec impatience tes premières images de vortex supraconducteurs !

Je remercie également toutes les autres personnes qui ont contribué à ce travail, Luis Martinez pour les dernières expériences sur les parois de domaine, Piernicola Spinicelli et Mayeul Chipaux pour les mesures de la photodynamique du centre NV en fonction du champ magnétique, Frédéric Grosshans pour son apport théorique sur ce même sujet, Adrien Cavaillès pour les mesures de relaxométrie de spin, Ludovic Mayer pour la préparation de nanoparticules dopées et ses conseils d'expert chimiste-électronicien ; nos collaborateurs du LPS, André Thiaville et surtout Stanislas Rohart, pour leurs idées, leur aide sur les calculs micromagnétiques et pour la fabrication et préparation de nombreux échantillons ; nos collaborateurs de l'IEF, Karin Garcia pour la fabrication de maints échantillons, Liza Herrera Diez pour la préparation et nucléation des échantillons, Joo-Von Kim pour ses nombreuses idées, son aide sur l'analyse théorique des résultats expérimentaux, et son aide sur l'écriture des articles, Jean-Paul Adam pour les mesures de caractérisation, les simulations thermiques, et son aide sur la fabrication d'échantillons, Dafiné Ravelosona pour ses idées et son aide sur l'interprétation des données ; nos collaborateurs de Spintec, Gilles Gaudin pour la fabrication d'échantillons et Mihai Miron pour son aide sur l'interprétation des données ; Laurent Vila (INAC) et Berthold Ockert (Singulus) pour la fabrication d'échantillons.

Par ailleurs, je tiens à remercier les personnes ayant contribué aux résultats les plus récents, bien qu'ils ne figurent pas dans ce mémoire. Je remercie en particulier nos collaborateurs de l'UM φ CNRS/Thales, Vincent Cros, Nicolas Reyren, Karin Garcia, Constance Moreau-Luchaire, Karim Bouzehouane, Manuel Bibes, Stéphane Fusil, Cécile Carretero, Vincent Garcia, nos collaborateurs de Tsukuba (Japon), Jacob Torrejon et Masamitsu Hayashi, nos collaborateurs du LSPM, Vianney Mille, Alexandre Tallaire et Jocelyn Achard, ainsi que la nouvelle recrue de notre équipe, Isabell Gross.

Mes remerciements vont également à Isabelle Ledoux-Rak, directrice du LPQM, pour m'avoir accueilli au laboratoire, Joseph Lautru à l'IDA, pour les nombreux services rendus en salle blanche, Colin Lopez, Christian Ollier et Luc Floriot au département de

physique, pour leur aide sur des problèmes de mécanique ou d'électronique, Patrice Valade et Michel Lécivain au laboratoire SATIE, pour la réalisation de nombreuses pièces mécaniques et bobines, ainsi que Zina Challal, secrétaire du département de physique, pour sa disponibilité et son efficacité. Plus généralement, je remercie toutes les personnes qui m'ont apporté une aide sur le plan technique ou administratif, que ce soit de manière ponctuelle ou régulière, ou qui ont simplement contribué, par leur gentillesse et leur bonne humeur, à faire de ces trois années de thèse une expérience agréable. Je pense notamment – pardon à ceux que j'aurais oublié de mentionner – aux autres membres de l'équipe diamant de Cachan, François Treussart, Anaïs Dréau, Margarita Lesik, Pierre Jamonneau, Soroush Abbasi et Marie-Pierre Adam ; aux membres du LPQM, Stefan Bittner, Clément Lafargue, Mélanie Lebental, Mai Trang Do, Chi Thanh Nguyen, Ngoc Diep Lai, Ginette Puyhaubert, Géraud Delport, Jean-Sébastien Lauret et Emmanuelle Deleporte ; ainsi qu'à Thierry Debuisschert de TRT, qui nous rend visite régulièrement. Sans oublier Frédéric Mazaleyrat, sans qui je n'aurais jamais eu connaissance du projet de Vincent.

Pour finir, je remercie Russell Cowburn et Jean-Jacques Greffet pour avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail de thèse, Claude Fermon et Vincent Repain pour leur présence dans mon jury en tant qu'examineurs, et Albert Fert pour avoir accepté de présider mon jury de thèse.

Table des matières

Remerciements	3
Introduction	11
1 Le centre NV du diamant comme magnétomètre de dimension atomique	15
1.1 Introduction	15
1.2 Principales propriétés du centre NV	17
1.2.1 Structure électronique et propriétés optiques	17
1.2.2 Résonance de spin détectée optiquement	19
1.2.3 Temps de relaxation de l'état de spin	22
1.3 Magnétométrie par spectroscopie de résonance de spin	24
1.3.1 Hamiltonien de spin	25
1.3.2 Régime des champs "faibles"	27
1.3.3 Régime des champs "forts"	29
1.3.4 Direction et signe du champ mesuré	30
1.3.5 Protocoles de mesure et sensibilité	32
1.4 Magnétométrie par extinction de fluorescence	34
1.4.1 Modèle de la photodynamique du centre NV dans un champ ma- gnétique statique	35
1.4.2 Résultats expérimentaux	39
1.4.3 Discussion	46
1.5 Conclusion	48
2 Réalisation d'un microscope de champ magnétique basé sur le centre NV du diamant	49
2.1 Introduction	49
2.2 Architecture du microscope à centre NV	50
2.2.1 Dispositif expérimental	50
2.2.2 Greffer un nanodiamant sur la pointe AFM	54
2.2.3 Caractérisation du magnétomètre greffé	55
2.3 Imagerie de microplots ferromagnétiques	57
2.3.1 Un microdisque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ comme échantillon test	57
2.3.2 Différents modes d'imagerie	58
2.3.3 Résolution spatiale	63
2.3.4 Imagerie de textures d'aimantation plus complexes	67
2.4 Imagerie magnétique dans le régime des champs forts	71
2.4.1 Effet du champ transverse sur l'imagerie par spectroscopie ESR . .	72
2.4.2 Imagerie d'un réseau de bits magnétiques par extinction de fluo- rescence	73
2.5 Conclusion	76

3	Application à l'étude de parois de domaine dans des couches ferromagnétiques ultraminces	79
3.1	Introduction	79
3.2	Éléments de la théorie micromagnétique des parois de domaine	82
3.2.1	Structure interne d'une paroi de domaine	82
3.2.2	Déplacement d'une paroi de domaine par un courant électrique	86
3.2.3	Rôle de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya	87
3.3	Détermination directe de la nature d'une paroi de domaine	90
3.3.1	Principe de la méthode	91
3.3.2	Procédure de calibration	95
3.3.3	Résultats sur des échantillons de Ta CoFeB(1 nm) MgO	99
3.3.4	Résultats sur un échantillon de Pt Co(0.6 nm) AlO _x	107
3.4	Étude de la dynamique d'une paroi de domaine sous l'effet d'un chauffage local	110
3.4.1	Reconstruction du profil de position d'une paroi	112
3.4.2	Observation et analyse des sauts d'une paroi entre deux sites de piégeage	114
3.4.3	Modèle de la dynamique de paroi sous l'effet du laser	119
3.4.4	Application à la cartographie des sites de piégeage	123
3.5	Conclusion	125
4	Détection du bruit magnétique avec le centre NV du diamant par relaxométrie de spin	127
4.1	Introduction	127
4.2	Relaxation de spin du centre NV dans les nanodiamants	128
4.2.1	Mesure optique du temps de relaxation de spin T_1	128
4.2.2	Étude de T_1 en fonction de la taille du nanodiamant	132
4.2.3	Relaxation induite par un bain de spins surfacique	133
4.3	Détection de molécules paramagnétiques par relaxométrie de spin	139
4.3.1	Réduction du temps de relaxation T_1	139
4.3.2	Réduction du contraste optique	142
4.3.3	Sensibilité de la méthode	144
4.4	Conclusion	146
	Conclusion et perspectives	149
A	Simulation des images de champ magnétique obtenues par microscopie à centre NV	151
A.1	Méthode générale	151
A.1.1	Discrétisation de la distribution d'aimantation	152
A.1.2	Calcul du champ de fuite	152
A.1.3	Application de la réponse du centre NV	154
A.2	Exemples illustratifs	155
A.2.1	Exemple 1 : Structure vortex dans un microplot carré	155
A.2.2	Exemple 2 : Paroi de domaine dans une couche ultramince à aimantation perpendiculaire	157
A.3	Modèles pour le calcul du champ de fuite d'une paroi de domaine	158
A.3.1	Modèles à une dimension	158
A.3.2	Modèles à deux dimensions	165

B Incertitudes sur les prédictions théoriques du champ de fuite d'une pa-	
roi	171
B.1 Description du problème	171
B.2 Incertitude sur la contribution perpendiculaire \mathbf{B}^\perp	172
B.3 Incertitude sur la contribution planaire \mathbf{B}^\parallel	176
B.4 Incertitude globale	176
Bibliographie	179
Publications	193

Introduction

La capacité à détecter et cartographier le champ magnétique à l'échelle du nanomètre est essentielle dans de nombreux domaines de la science. Le champ magnétique est en effet une grandeur physique qui trouve sa source dans la matière, selon deux processus. D'une part, les composants élémentaires de la matière – électrons et nucléons – portent un moment magnétique intrinsèque, le *spin*, qui produit un champ magnétique. D'autre part, les charges électriques – portées par les électrons, protons et ions – génèrent également un champ magnétique du fait de leurs *mouvements*. Ainsi, la caractérisation du champ magnétique est un moyen d'étudier l'organisation de la matière, aussi bien sous forme solide que molle ou liquide, ainsi que les processus dynamiques qui ont lieu en son sein. Par exemple, le couplage collectif des spins dans les matériaux ferromagnétiques peut être analysé via le champ magnétique généré [1, 2]. Les courants de charge et de spin dans les matériaux exotiques – graphène, isolants topologiques, etc. – peuvent également être détectés via le champ magnétique associé [3, 4]. Par ailleurs, il existe aussi des applications potentielles en biologie. En particulier, la structure moléculaire des protéines pourrait être déterminée grâce aux fluctuations de champ magnétique induites par les protons [5–7]. Les potentiels d'action dans les réseaux neuronaux [8], ou encore les flux ioniques à travers les membranes cellulaires [9], sont d'autres exemples de phénomènes qui pourraient être étudiés via la détection du champ magnétique à l'échelle nanométrique.

Pour permettre ces avancées, de nombreuses techniques de magnétométrie ont été développées au cours des dernières décennies. Dans l'idéal, un capteur de champ magnétique devrait être de taille nanométrique, sensible au champ produit par les particules élémentaires – soit $\approx 1 \mu\text{T}$ à 10 nm d'un électron et $\approx 1 \text{nT}$ à 10 nm d'un proton – et non invasif, c'est-à-dire qu'il ne doit pas perturber la source du champ. Les magnétomètres les plus sensibles à ce jour sont ceux basés sur des vapeurs atomiques, qui exploitent l'interaction du spin des atomes avec le champ magnétique [10]. Cependant, leur taille macroscopique les rend inadéquates pour la plupart des applications mentionnées précédemment, et les destine plutôt à la mesure des champs géomagnétiques. Des magnétomètres plus petits existent, tels que la sonde à effet Hall ou le SQUID, acronyme de “superconducting quantum interference device”, et peuvent être également très sensibles [11]. Mais leur taille est au mieux de l'ordre du micromètre, ce qui reste insuffisant pour de nombreuses applications. Une exception notable est le microscope à force magnétique qui, en détectant la force magnétique exercée sur une pointe magnétique, permet de cartographier le champ magnétique avec une résolution de l'ordre de 10 nm [12]. Néanmoins, cet instrument est peu sensible, magnétiquement invasif, et ne fournit qu'une information qualitative¹.

1. Notons pour être complets qu'il existe par ailleurs un grand nombre de techniques qui permettent, sans mesurer directement le champ magnétique, de visualiser les moments magnétiques d'un objet en exploitant l'interaction de particules “sonde” – généralement des électrons, neutrons ou photons – avec l'échantillon à étudier. Elles permettent d'étudier aussi bien des échantillons ferromagnétiques (microscopie Lorentz, à effet Kerr, à rayons X en transmission, à effet tunnel polarisé en spin, etc. [13, 14]) que des échantillons paramagnétiques (imagerie par résonance magnétique [15], microscopie à force de résonance magnétique [16]). Toutefois, ces techniques ne permettent pas de détecter les champs magnétiques créés par des courants de charges.

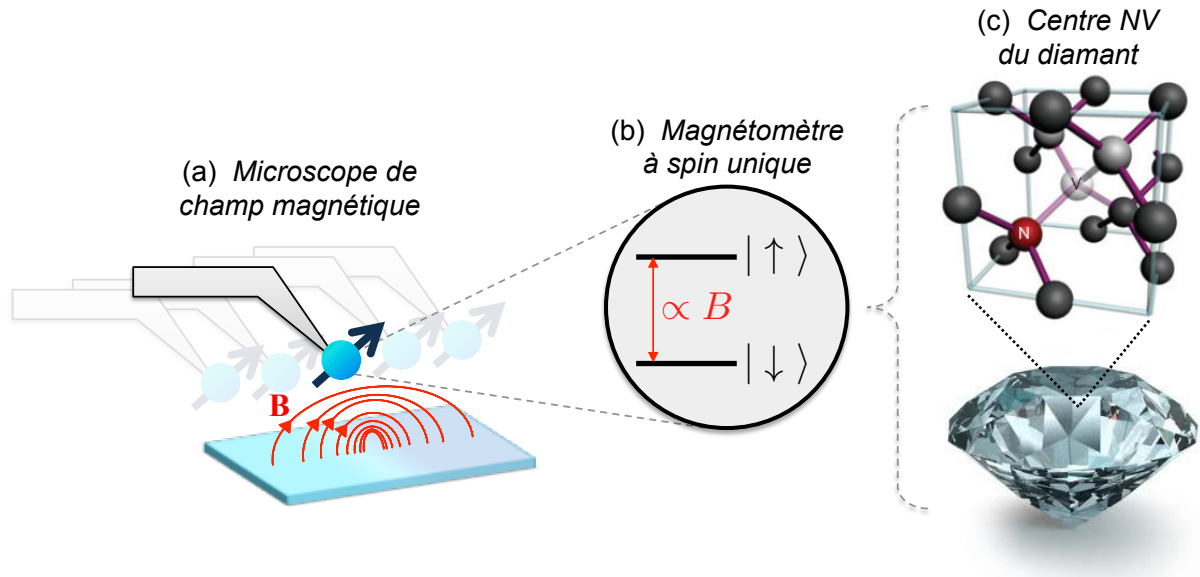


FIGURE 1 – (a) Selon la proposition de Chernobrod et Berman [17], un microscope de champ magnétique pourrait être réalisé en intégrant un spin individuel dans un microscope à sonde locale. (b) Le spin peut servir de magnétomètre en mesurant la différence d’énergie entre les états parallèle et antiparallèle du spin par rapport au champ magnétique local. (c) Structure atomique du défaut azote-lacune dans le diamant, traditionnellement appelé centre NV. Le spin associé à ce défaut peut servir de magnétomètre suivant le principe (b), et permettre la réalisation d’un microscope de champ magnétique comme en (a).

Il y a une décennie environ, un nouveau concept a émergé, qui consiste à intégrer un *spin électronique individuel* dans un microscope à sonde locale [17] (figure 1a). En mesurant les variations d’énergie des états du spin sous l’effet du champ magnétique par effet Zeeman, un spin électronique peut en effet servir de magnétomètre de taille atomique (figure 1b). Le microscope à sonde locale permet alors de déplacer le spin au-dessus d’un échantillon afin d’en cartographier le champ magnétique. Ce nouveau type de microscope de champ magnétique bénéficierait ainsi des performances des magnétomètres de type atomique – grande sensibilité, mesures quantitatives et non invasives – tout en offrant une résolution spatiale nanométrique.

Ce concept a été proposé par Chernobrod et Berman en 2005 [17], basé sur des idées antérieures de Sekatskii et Letokhov [18]. Pourtant, ce n’est que très récemment qu’il est devenu réalité, grâce à l’essor des techniques de détection de systèmes quantiques à l’échelle individuelle, développées initialement pour explorer les lois de la mécanique quantique ainsi que les concepts du traitement quantique de l’information [19–22].

Un système en particulier fait figure de candidat idéal pour la réalisation du microscope à spin unique de Chernobrod et Berman. Il s’agit du défaut azote-lacune dans le diamant [23], qui consiste en un atome de carbone manquant – une lacune – associé à une impureté d’azote qui remplace un atome de carbone sur un site adjacent (figure 1c). Ce défaut cristallin, communément appelé “centre NV” pour la dénomination anglaise *nitrogen-vacancy*, se comporte essentiellement comme une molécule fluorescente “nichée” à l’intérieur de la matrice de diamant [24]. Depuis plusieurs années, le spin électronique associé au centre NV est utilisé comme système quantique modèle à l’état solide, bénéficiant notamment de ses propriétés optiques particulières [25–28].

En 2008, il a été démontré que le spin du centre NV peut également servir de magnétomètre ultrasensible [29, 30], et être intégré dans un microscope à sonde locale pour en faire un microscope de champ magnétique [31, 32]. Dans le contexte de l'imagerie magnétique, ce "microscope à centre NV" présenterait des caractéristiques jamais réunies auparavant dans un même instrument. Il permettrait en effet des mesures quantitatives et non invasives du champ magnétique aux conditions ambiantes, avec un volume de détection sub-nanométrique et une sensibilité lui permettant de détecter un spin électronique individuel [33].

En 2011, notre équipe a entrepris la réalisation d'un microscope à centre NV dédié à l'imagerie d'échantillons ferromagnétiques. Le travail que nous présentons dans ce mémoire de thèse est consacré principalement au développement de ce microscope, puis à son utilisation pour l'étude de couches ferromagnétiques ultraminces.

Plan du mémoire

Ce mémoire est divisé en quatre chapitres.

Le chapitre 1 est consacré à la présentation des techniques de magnétométrie basées sur le centre NV du diamant. Nous commencerons par décrire les principales propriétés photophysiques du centre NV, qui permettent de détecter la résonance magnétique d'un spin électronique unique et de mesurer, via l'effet Zeeman, le champ magnétique. Nous détaillerons ensuite les différents régimes de fonctionnement du magnétomètre, et discuterons de sa sensibilité [33, 34].

Dans le chapitre 2, nous présenterons le dispositif expérimental central de cette thèse, à savoir le microscope à centre NV. Le point clé de la réalisation de ce microscope réside dans la capacité à greffer un nanocristal de diamant, contenant un centre NV unique, sur la pointe d'un microscope à force atomique [35]. Après avoir caractérisé le magnétomètre, nous décrirons différentes techniques d'imagerie du champ magnétique basées sur les méthodes introduites au chapitre 1. Ces techniques seront illustrées par des expériences sur des structures vortex dans des microplots ferromagnétiques, ce qui nous permettra d'analyser précisément les potentialités offertes par le microscope [36, 37]. Nous montrerons en particulier que le microscope à centre NV est capable de cartographier le champ magnétique produit par un échantillon de manière quantitative, vectorielle, tri-dimensionnelle, non invasive, et avec un volume de détection nanométrique, le tout aux conditions ambiantes.

Le chapitre 3 est dédié à l'étude, à l'aide du microscope à centre NV, de parois de domaine dans des couches ferromagnétiques ultraminces à anisotropie perpendiculaire. Après avoir présenté le contexte et les enjeux d'une telle étude, nous introduirons une méthode originale pour déterminer la nature de ces parois de domaine, que nous appliquerons à différents systèmes de matériaux [38]. Nous démontrerons en particulier que les parois sont de type Néel dans un échantillon de $\text{Pt|Co(0.6 nm)|AlO}_x$, alors que les modèles micromagnétiques les plus simples prédisent des parois de type Bloch [39]. Ce résultat fournit une preuve directe de l'existence d'une interaction Dzyaloshinskii-Moriya interfaciale dans ce système. Dans un second temps, nous utiliserons le microscope à centre NV pour étudier les mouvements stochastiques d'une paroi de domaine dans une piste magnétique [40]. En particulier, l'effet d'un chauffage local induit par laser sera analysé puis exploité pour explorer le piégeage des parois par les défauts structuraux.

Enfin, nous démontrerons dans le chapitre 4 que le centre NV du diamant peut être également utilisé pour détecter les fluctuations temporelles du champ magnétique plu-

tôt que le champ statique. Autrement dit, le centre NV est aussi un capteur de bruit magnétique. Nous décrirons d'abord la méthode, qui est basée sur la mesure par des moyens optiques du temps de relaxation du spin électronique associé au centre NV. Nous appliquerons ensuite cette technique de relaxométrie à la détection de molécules paramagnétiques adsorbées à la surface du diamant [41]. Cette fonctionnalité présente un intérêt tout particulier pour l'étude d'échantillons biologiques, et ouvre des perspectives pour la microscopie à centre NV au-delà de l'étude d'échantillons ferromagnétiques.

Le centre NV du diamant comme magnétomètre de dimension atomique

Sommaire

1.1	Introduction	15
1.2	Principales propriétés du centre NV	17
1.2.1	Structure électronique et propriétés optiques	17
1.2.2	Résonance de spin détectée optiquement	19
1.2.3	Temps de relaxation de l'état de spin	22
1.3	Magnétométrie par spectroscopie de résonance de spin	24
1.3.1	Hamiltonien de spin	25
1.3.2	Régime des champs "faibles"	27
1.3.3	Régime des champs "forts"	29
1.3.4	Direction et signe du champ mesuré	30
1.3.5	Protocoles de mesure et sensibilité	32
1.4	Magnétométrie par extinction de fluorescence	34
1.4.1	Modèle de la photodynamique du centre NV dans un champ magnétique statique	35
1.4.2	Résultats expérimentaux	39
1.4.3	Discussion	46
1.5	Conclusion	48

1.1 Introduction

Bien que les propriétés électroniques, optiques, et magnétiques des défauts ponctuels dans les solides cristallins soient étudiées depuis très longtemps, leur étude à l'échelle du défaut individuel n'a été possible que dans les deux dernières décennies grâce aux progrès instrumentaux [42]. Un défaut en particulier fait l'objet d'une activité de recherche intense depuis une dizaine d'années. Il s'agit du défaut azote-lacune dans le diamant [23], qui consiste en un atome de carbone manquant – une lacune – associé à une impureté d'azote qui remplace un atome de carbone sur un site adjacent (figure 1.1a). Ce défaut, communément appelé "centre NV" pour la dénomination anglaise *nitrogen-vacancy*, fait partie des très nombreux défauts optiquement actifs du diamant, que ceux-ci soient d'origine naturelle ou synthétique [43].

Le centre NV est responsable de l'apparition d'états électroniques localisés, dont l'énergie se situe dans la bande interdite du diamant (figure 1.1b). Le diamant étant un semi-conducteur à large bande interdite (≈ 5.5 eV), ces états sont découplés des bandes de

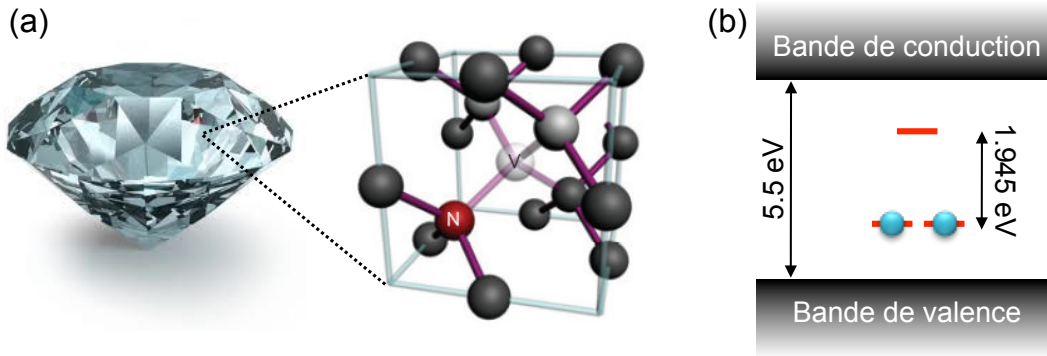


FIGURE 1.1 – (a) Structure atomique du défaut azote-lacune (centre NV) dans le cristal de diamant. Les sphères noires représentent les atomes de carbone. (b) Diagramme énergétique montrant les bandes de conduction et de valence du diamant ainsi que, de manière simplifiée, les états électroniques localisés associés au centre NV (traits rouges). Les points bleus symbolisent les électrons qui occupent ces états dans le niveau fondamental du centre NV.

valence et de conduction, si bien que le centre NV se comporte essentiellement comme une molécule “nichée” à l’intérieur de la matrice de diamant. Il présente en particulier une transition optique à 1.945 eV, qui se situe dans le domaine du visible [23]. Ce défaut a été observé à l’échelle individuelle pour la première fois en 1997 par J. Wrachtrup et collègues à l’Université de Technologie de Chemnitz [24], à l’aide d’une technique standard de microscopie optique confocale. Il a ensuite été beaucoup étudié pour ses propriétés de spin, surtout à partir de 2004 lorsqu’il a été réalisé que le centre NV permet la manipulation cohérente d’un spin électronique unique, à température ambiante [25], ouvrant la voie à de nombreuses expériences visant à étudier la physique des spins dans les solides et à les utiliser comme bits d’information quantique [44–47].

En 2008, inspirés par ces travaux sur l’étude et le contrôle du spin associé au centre NV du diamant, les équipes de M. Lukin à l’Université de Harvard et J. Wrachtrup à l’Université de Stuttgart ont montré qu’un centre NV individuel peut servir de capteur de champ magnétique, ultra-sensible et de taille atomique [29–31]. Le principe du capteur repose sur la mesure de la structure fine du centre NV qui, par effet Zeeman, varie en fonction du champ magnétique local. Cette mesure est réalisable y compris pour un centre NV unique, en tirant profit de ses propriétés optiques particulières. Dans ce chapitre, nous donnons d’abord les éléments théoriques permettant de comprendre en détail cette technique de magnétométrie à centre NV, puis nous introduirons une nouvelle technique de magnétométrie, complémentaire de la précédente et basée uniquement sur les propriétés magnéto-optiques du centre NV.

Ce chapitre est organisé de la manière suivante. Nous commencerons d’abord par décrire les principales propriétés photophysiques du centre NV, dans le but de comprendre comment il est possible de détecter optiquement sa structure fine (§ 1.2). Puis, par un examen détaillé de l’influence de l’effet Zeeman, nous analyserons les différents régimes de fonctionnement du magnétomètre à centre NV, ainsi que la sensibilité associée (§ 1.3). En particulier, nous verrons que cette méthode spectroscopique est limitée à un régime de champs “faibles”, typiquement en-deçà de 20 mT. Nous introduirons alors un modèle de la photophysique du centre NV qui permet d’expliquer quantitativement cette limitation (§ 1.4). Puis nous montrerons, à la fois théoriquement et expérimentalement, que le régime

des champs “forts” peut être adressé par une nouvelle technique de magnétométrie basée sur un effet d’extinction de fluorescence.

1.2 Principales propriétés du centre NV

Dans cette section, nous allons décrire les propriétés du centre NV qui nous seront utiles dans le reste du chapitre et du manuscrit. Nous commencerons par présenter la structure électronique et les propriétés optiques du centre NV (§ 1.2.1). Nous verrons ensuite comment il est possible de détecter optiquement la résonance de spin électronique du centre NV (§ 1.2.2), puis discuterons des temps de relaxation de l’état de spin (§ 1.2.3).

1.2.1 Structure électronique et propriétés optiques

La cohésion du diamant est assurée par les quatre électrons de valence apportés par chaque atome de carbone. Dans le centre NV, deux atomes de carbone adjacents sont remplacés par un atome d’azote et une lacune. L’atome d’azote, en se substituant à un atome de carbone, apporte un électron excédentaire, tandis que la lacune laisse les quatre atomes adjacents avec un électron non lié chacun. Cela fait un total de cinq électrons ne participant pas à une liaison covalente. Cette forme neutre à cinq électrons est traditionnellement notée NV^0 . Cependant, lorsqu’il se trouve loin de toute surface ou interface, le centre NV se présente généralement sous sa forme ionisée NV^- , avec un total de six électrons [48, 49]. L’électron supplémentaire vient vraisemblablement d’une impureté de type donneur, par exemple un atome d’azote se substituant à un atome de carbone, dont l’électron excédentaire vient se piéger dans le centre NV pour abaisser l’énergie totale [50]. Ainsi, le centre NV, sous sa forme ionisée NV^- notée simplement NV dans la suite, peut être vu comme un système de six électrons confinés au voisinage du défaut [51–53].

Cependant, quatre de ces électrons sont appariés, laissant seulement deux électrons non appariés occupant deux orbitales distinctes (figure 1.1b). Dans la suite, nous ne considérerons que ces deux électrons non appariés, ce qui suffit pour comprendre la plupart des propriétés observables du centre NV. Un traitement plus détaillé de la structure électronique du centre NV et de ses conséquences sur les propriétés photophysiques du défaut peut être trouvé dans la référence [23].

La structure électronique simplifiée de ce système à deux électrons est montrée dans la figure 1.2a. Elle comporte deux niveaux d’énergie, désignés comme niveaux fondamental et excité, couplés par une transition dipolaire électrique d’énergie 1.945 eV, ce qui correspond à une longueur d’onde de 637 nm. Le niveau fondamental correspond à la situation schématisée dans la figure 1.1b, où les deux électrons occupent les deux orbitales de plus basse énergie, tandis que le niveau excité correspond au cas où l’un des deux électrons est promu dans une orbitale d’énergie supérieure.

Du fait de cette transition optique à 637 nm, le centre NV peut être excité avec un laser, et émettre de la lumière de fluorescence. Cependant, l’interaction électron-phonon affecte fortement les propriétés spectrales de l’interaction du centre NV avec la lumière [55]. Ceci est illustré dans la figure 1.2b, qui montre que les spectres d’absorption et d’émission sont très larges (~ 100 nm), et significativement décalés par rapport à la “raie à zéro phonon” à 637 nm. Ce “décalage Stokes” permet de détecter facilement la fluorescence du centre NV. En pratique, on utilise généralement un laser vert à la longueur d’onde de 532 nm pour exciter efficacement le centre NV, puis la lumière de fluorescence est séparée par filtrage spectral, en ne gardant que la gamme de longueurs d’onde 650 – 750 nm.

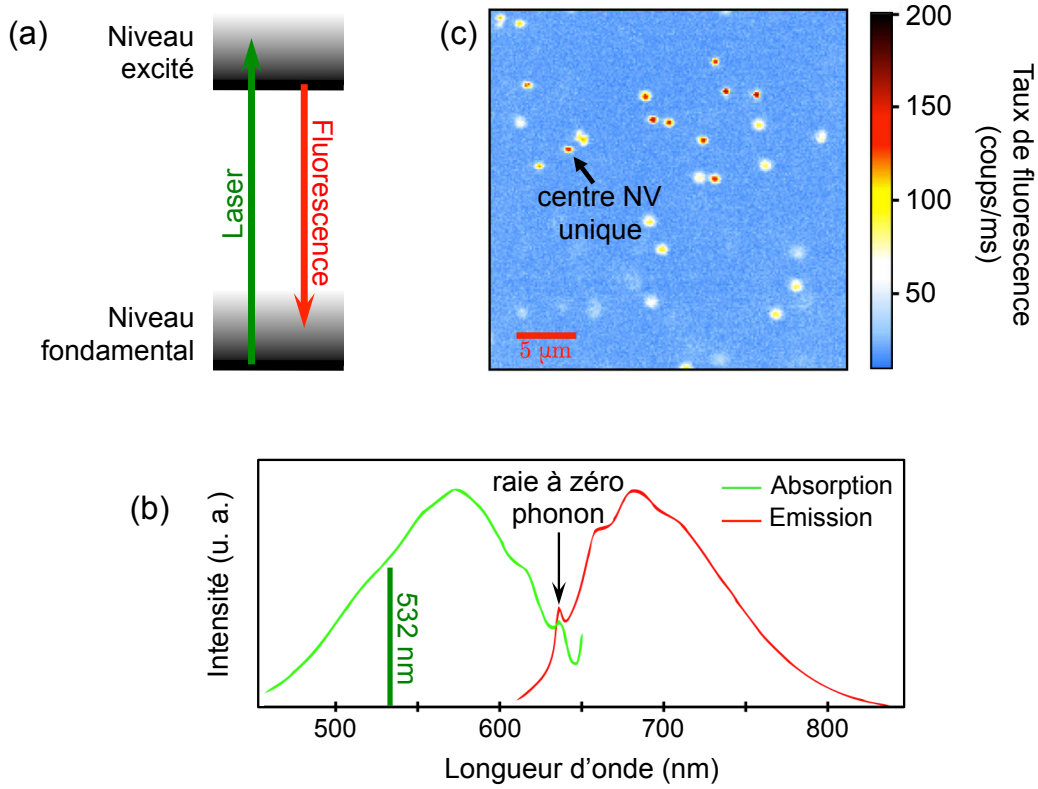


FIGURE 1.2 – (a) Schéma simplifié des niveaux d’énergie du centre NV. Le dégradé gris traduit la présence de sous-niveaux vibrationnels. Après excitation par un laser vert, le centre NV relaxe vers le niveau fondamental par émission de fluorescence rouge. (b) Spectres d’absorption et d’émission du centre NV, tirés de la référence [54]. La courbe verte est l’intensité totale de fluorescence en fonction de la longueur d’onde d’excitation, la courbe rouge est le spectre de fluorescence pour une excitation à une longueur d’onde de 532 nm. (c) Image de microscopie confocale d’un diamant massif, montrant des spots de fluorescence correspondant à des centres NV individuels.

En utilisant un microscope confocal à fluorescence équipé d’un détecteur suffisamment sensible, typiquement une photodiode à avalanche, on peut ainsi détecter le signal d’un centre NV individuel [24]. La figure 1.2c montre une image de microscopie confocale d’un diamant massif monocristallin. Les spots de fluorescence correspondent à des centres NV individuels. Le niveau de signal détecté sature typiquement à une valeur de l’ordre de 100 coups/ms pour un centre unique, c’est-à-dire que 100 photons sont détectés chaque milliseconde.

Une propriété remarquable du centre NV est sa *parfaite photostabilité à température ambiante*. Excité en continu, il peut émettre un signal de fluorescence à taux constant sans jamais s’éteindre ni clignoter, contrairement à d’autres émetteurs individuels tels que les molécules de colorant [56] ou les boîtes quantiques semi-conductrices [57]. Cette propriété est cruciale pour la plupart des applications du centre NV, y compris celle qui nous intéresse ici. Elle permet en effet de détecter les faibles variations de signal liées à un changement de l’état de spin, comme nous allons le voir dans la section suivante.

1.2.2 Résonance de spin détectée optiquement

Comme les deux électrons du centre NV occupent deux orbitales différentes (figure 1.1b), leurs moments cinétiques de spin s'additionnent pour former soit un état singulet, de nombre quantique de spin $S = 0$, soit un état triplet, de nombre quantique de spin $S = 1$. Ces deux états possèdent des énergies différentes du fait de l'interaction d'échange. Dans le cas présent, le triplet possède une énergie inférieure à celle du singulet. Le niveau fondamental du centre NV est donc un *triplet de spin* [48, 49]. Le niveau excité est également un triplet de spin, ce qui signifie que les transitions optiques de la figure 1.2a ont lieu entre deux états triplets de spin [58].

Dans ces niveaux triplets, l'interaction spin-spin entre les deux électrons non appariés donne lieu à une levée de dégénérescence entre le sous-niveau de spin $|m_s = 0\rangle$ et le doublet $|m_s = \pm 1\rangle$ (figure 1.3a). Ici, m_s est la projection de spin selon l'axe de quantification intrinsèque du centre NV, qui est l'axe NV reliant l'azote à la lacune. C'est ainsi l'existence de cette interaction spin-spin qui fixe l'axe de quantification du centre NV en l'absence de champ magnétique extérieur. Cette structure fine, caractérisée par les constantes de clivage $D_f \approx 2.87$ GHz dans le niveau fondamental et $D_e \approx 1.42$ GHz dans le niveau excité [59], sera discutée plus en détail dans la section 1.3.

Par ailleurs, il existe au moins deux états singulets ($S = 0$) d'énergies intermédiaires entre les triplets fondamental et excité [60]. Ces singulets sont couplés aux triplets par l'interaction spin-orbite et par l'interaction électron-phonon [23], ce qui autorise des transitions des triplets vers les singulets et vice versa, appelées croisements inter-systèmes. Il nous suffit ici de ne considérer qu'un seul de ces singulets, qu'on appellera *niveau métastable* car sa durée de vie est bien plus longue (≈ 200 ns, cf. chapitre 4) que les autres états du centre NV. On aboutit donc à une structure à trois niveaux comme schématisée dans la figure 1.3a, qui nous permet de comprendre la plupart des propriétés photophysiques du centre NV à température ambiante.

Lorsque le centre NV est promu dans le niveau excité par un laser vert, il peut relaxer soit directement vers le fondamental en émettant un photon rouge, soit non radiativement via l'état métastable [61]. Une propriété importante du centre NV est que ces deux chemins de relaxation possibles n'affectent pas de la même manière la projection de spin m_s . En effet, alors que les transitions radiatives entre les deux triplets *conservent* la projection de spin ($\Delta m_s = 0$), la relaxation non radiative via l'état métastable *ne conserve pas* m_s . Surtout, les taux de transitions depuis et vers l'état métastable *dépendent* du nombre m_s . Plus précisément, l'état $|m_s = 0\rangle$ du niveau excité a une forte probabilité de relaxer radiativement vers le fondamental en conservant $m_s = 0$, tandis que les états $|m_s = \pm 1\rangle$ préfèrent, en moyenne, emprunter le chemin non radiatif et relaxer ensuite indifféremment vers l'un des états $|m_s = 0, \pm 1\rangle$ du fondamental [62] (figure 1.3a).

L'existence de cette relaxation non radiative dépendant de l'état de spin a deux conséquences remarquables. La première est qu'après quelques cycles d'absorption-relaxation sous illumination par le laser vert, le centre NV est *polarisé* dans l'état de spin $|m_s = 0\rangle$, et ce quelque soit l'état initial, $|m_s = 0, \pm 1\rangle$ ou une distribution thermique. De plus, à tout instant, le taux instantané de fluorescence (nombre de photons rouges émis par unité de temps) est *indicatif de l'état de spin* du centre NV à cet instant : une forte intensité signifie que $m_s = 0$, une faible intensité signifie que $m_s = \pm 1$. De façon schématique, on peut dire que $|m_s = 0\rangle$ est un état "brillant" tandis que $|m_s = \pm 1\rangle$ sont des états "sombres" (figure 1.3b).

Ainsi, il est possible d'une part de polariser optiquement le spin du centre NV, et d'autre part de lire optiquement l'état de spin du centre NV. Ces deux propriétés per-

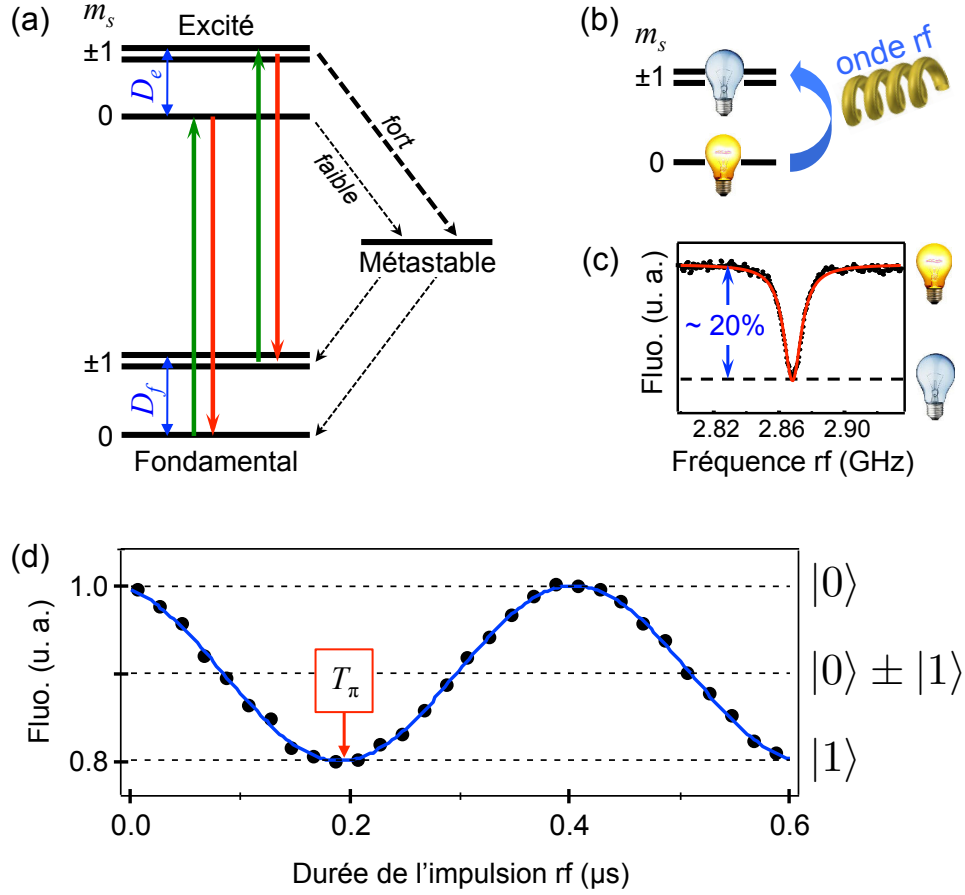


FIGURE 1.3 – (a) Diagramme énergétique du centre NV incluant la structure fine des niveaux fondamental et excité ainsi que le niveau métastable. Les flèches continues (resp. pointillées) indiquent les transitions radiatives (resp. non radiatives). (b) L’état de spin, caractérisé par le nombre quantique $m_s = 0, \pm 1$, peut être modifié en appliquant une onde radiofréquence (rf) résonante, ce qui se traduit par une variation du niveau de fluorescence car l’état $|m_s = 0\rangle$ est plus “brillant” que les états $|m_s = \pm 1\rangle$. (c) Spectre de résonance de spin d’un centre NV unique, obtenu en mesurant l’intensité de fluorescence en fonction de la fréquence de l’onde rf appliquée. La raie à ≈ 2.87 GHz correspond à la transition $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1\rangle$ du niveau fondamental. (d) Oscillations de Rabi entre les états $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$, réalisées en appliquant une impulsion rf de durée variable résonante avec la transition $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ et visualisées en mesurant l’intensité de fluorescence juste après l’impulsion rf. Un champ magnétique est appliqué pour lever la dégénérescence entre les états $|m_s = +1\rangle$ et $|m_s = -1\rangle$.

mettent de réaliser une détection optique de la résonance de spin d’un centre NV individuel dans son niveau fondamental. En effet, lorsqu’une onde radiofréquence (rf) résonante avec la transition $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1\rangle$ est appliquée, une partie des populations du centre NV sont transférées de l’état brillant $|m_s = 0\rangle$ vers les états sombres $|m_s = \pm 1\rangle$, résultant en une chute du taux de fluorescence sous excitation optique continue. Pour observer ce phénomène, on balaye la fréquence rf tout en mesurant le taux de fluorescence [24]. Le spectre résultant fait apparaître une résonance à une fréquence $D_f \approx 2.87$ GHz, correspondant effectivement à la transition de spin $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = \pm 1\rangle$ du niveau électronique fondamental (figure 1.3c).

En appliquant une impulsion rf résonante de durée variable, on peut également observer directement des oscillations cohérentes, par exemple entre les états $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$, aussi appelées oscillations de Rabi (figure 1.3d). Pour une durée d'impulsion T_π correspondant à une demi-période d'oscillation – on parle alors d'impulsion π –, le spin est complètement inversé de l'état $|m_s = 0\rangle$ vers l'état $|m_s = +1\rangle$. Pour une durée d'impulsion $T_\pi/2$ égale au quart de la période d'oscillation (impulsion $\frac{\pi}{2}$), le spin est placé dans une superposition quantique $\frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = +1\rangle)$. Ces manipulations cohérentes d'un spin électronique individuel sont à la base de nombreuses expériences de démonstration des concepts de l'information quantique [25–28, 45].

La spectroscopie de résonance de spin, telle que réalisée dans la figure 1.3c, permet de sonder la structure fine de ce système à deux électrons et donc d'étudier son interaction avec l'environnement. En particulier, lorsqu'un champ magnétique statique est appliqué (figure 1.4a), la dégénérescence entre les états $|m_s = +1\rangle$ et $|m_s = -1\rangle$ est levée par effet Zeeman (figure 1.4b). On observe alors deux raies de résonance dans le spectre, correspondant aux transitions $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ d'une part et $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$ d'autre part (figure 1.4c). L'écart entre les deux raies renseigne essentiellement sur la projection du champ sur l'axe de symétrie du centre NV (figure 1.4a), notée B_{NV} . L'effet du champ magnétique sur le spectre de résonance de spin sera discuté plus en détail dans la section 1.3.

Ainsi, le centre NV peut servir de magnétomètre, capable de mesurer une composante donnée du champ magnétique local. Le volume de mesure est lié à la fonction d'onde électronique, qui est fortement localisée autour de la lacune et s'étend sur ≈ 0.6 nm [51], faisant du centre NV un *magnétomètre de dimension atomique*.

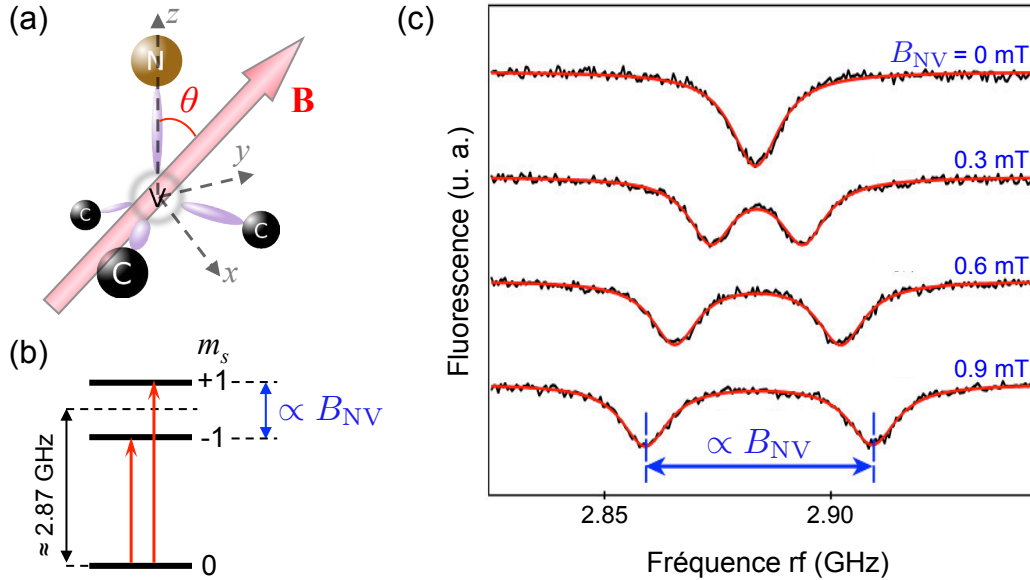


FIGURE 1.4 – (a) Le champ magnétique local \mathbf{B} forme un angle θ avec l'axe z parallèle à la direction NV, qui est l'axe de quantification du système. La projection du champ sur cet axe est notée B_{NV} . (b) La présence d'un champ magnétique sépare en énergie les états de spin $|m_s = +1\rangle$ et $|m_s = -1\rangle$ proportionnellement à B_{NV} . Ce clivage Zeeman résulte en deux transitions de spin distinctes $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = +1\rangle$ et $|m_s = 0\rangle \rightarrow |m_s = -1\rangle$. (c) Spectres de résonance de spin enregistrés pour un centre NV individuel à différentes valeurs du champ magnétique B_{NV} .

1.2.3 Temps de relaxation de l'état de spin

Avant de rentrer dans le détail de l'effet Zeeman, il est intéressant de discuter des propriétés temporelles de l'état de spin du centre NV, c'est-à-dire des temps de relaxation qui le caractérisent.

Selon la terminologie utilisée en résonance magnétique nucléaire, il existe trois temps caractéristiques notés T_1 , T_2^* et T_2 [63]. Le temps de relaxation longitudinale T_1 , aussi appelé durée de vie de spin, correspond au temps de retour à l'équilibre pour un centre NV initialement préparé dans l'état de spin $|m_s = 0\rangle$. Les temps de relaxation transversale T_2^* et T_2 , aussi appelés temps de cohérence de spin, caractérisent la perte de cohérence pour un centre NV initialement placé dans une superposition quantique du type

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = +1\rangle) . \quad (1.1)$$

Les temps T_2^* et T_2 correspondent donc à la relaxation de la superposition (1.1) vers un mélange purement statistique des états $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = +1\rangle$, lors d'une précession libre (T_2^*) ou lors d'une séquence d'écho de spin (T_2).

La relaxation – longitudinale ou transversale – de l'état de spin du centre NV du diamant est principalement gouvernée par deux interactions :

1. l'interaction avec les phonons (interaction “spin-réseau”) ;
2. l'interaction avec les impuretés paramagnétiques de l'environnement (interaction “spin-spin”).

Les principales impuretés paramagnétiques présentes dans le diamant sont les spins nucléaires associés aux atomes de ^{13}C , les spins électroniques associés aux impuretés d'azote, ou encore les spins électroniques associés aux états de surface. La source dominante de relaxation dépendra donc de la “qualité” du diamant utilisé.

Dans la suite de cette section, nous considérerons les deux situations suivantes :

1. des centres NV natifs dans des *diamants massifs* monocristallins pauvres en impuretés d'azote, produits par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) [64–66] ;
2. des centres NV implantés dans des nanocristaux de diamant – ou *nanodiamants* – riches en impuretés d'azote, produits par broyage d'un diamant synthétisé par la méthode haute pression haute température (HPHT) [67, 68].

Nous allons maintenant décrire les techniques expérimentales permettant de mesurer les temps T_1 , T_2^* et T_2 , puis nous discuterons des sources dominantes de relaxation dans les deux situations mentionnées ci-dessus. Les séquences de mesure ainsi que des résultats expérimentaux représentatifs sont regroupés dans la figure 1.5.

Temps de relaxation longitudinale (T_1) Il est possible de mesurer le temps de relaxation T_1 d'un centre NV individuel en exploitant ses propriétés optiques. Pour cela, une première impulsion laser est appliquée pour initialiser le spin dans l'état $|m_s = 0\rangle$, puis une seconde impulsion laser permet de sonder l'état de spin après un temps d'attente τ variable (figure 1.5a). Cette séquence est répétée un grand nombre de fois – typiquement 10^7 fois – afin de déduire la probabilité moyenne d'occupation de l'état $|m_s = 0\rangle$. Le taux de fluorescence lors de l'impulsion de lecture en fonction de τ forme ainsi une courbe décroissante dont T_1 est le temps caractéristique. Cette technique de mesure fera l'objet d'un traitement plus détaillé au chapitre 4 (cf. § 4.2.1).

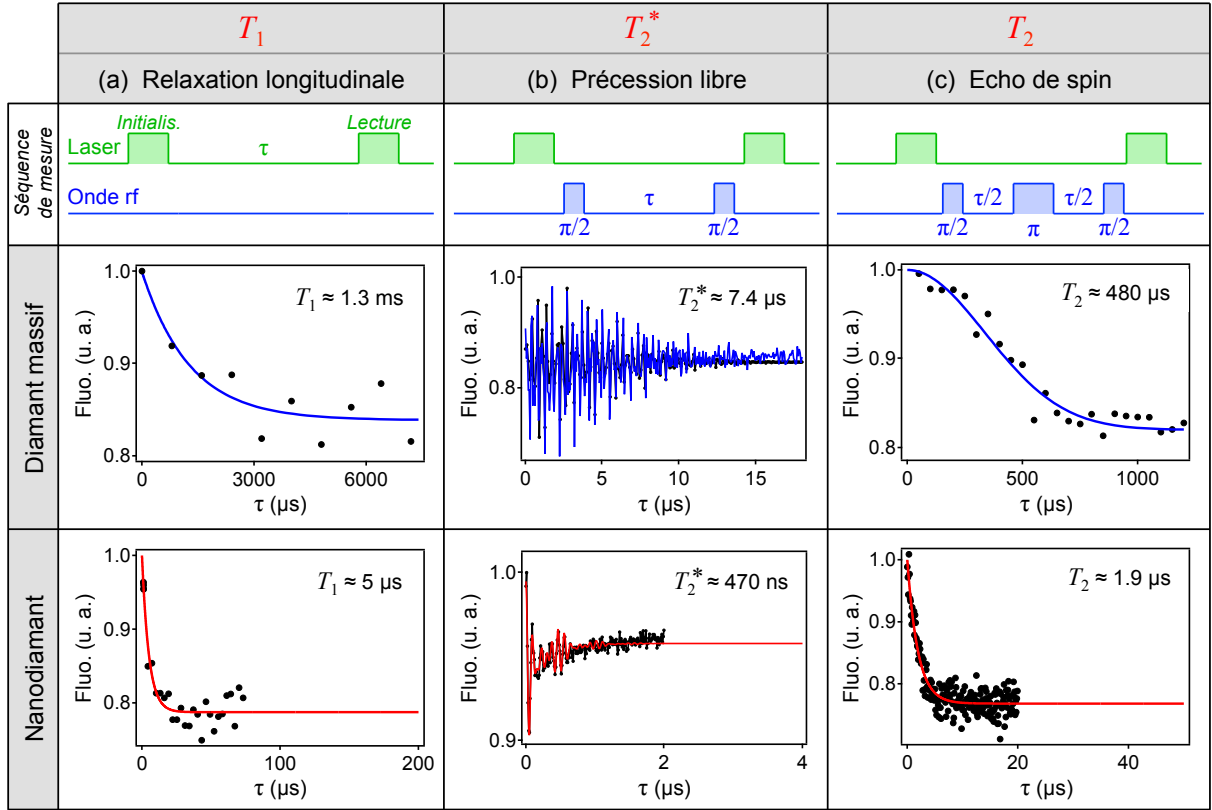


FIGURE 1.5 – Exemples de courbes de relaxation mesurées pour un centre NV individuel dans un diamant massif CVD (graphes du haut) et dans un nanodiamant de ≈ 50 nm de diamètre (graphes du bas). Les trois colonnes correspondent aux temps de relaxation T_1 (a), T_2^* (b) et T_2 (c). Les courbes sont obtenues en utilisant les séquences de mesure schématisées au-dessus des graphes.

Pour les centres NV dans le diamant massif, T_1 est dominé par le couplage avec les phonons [69]. Comme le diamant possède une température de Debye très élevée (2200 K), le temps de relaxation résultant est relativement long pour un système à l'état solide. À température ambiante, T_1 est généralement compris dans la gamme 1 – 10 ms, tandis qu'il peut atteindre 100 s à 4 K [69]. Dans les nanodiamants, T_1 est dominé par l'interaction spin-spin avec les impuretés paramagnétiques. Comme nous le verrons au chapitre 4, la contribution principale vient des centres paramagnétiques situés sur la surface du nanodiamant, qui induisent un bruit magnétique à large spectre (cf. § 4.2.3). Les temps T_1 peuvent ainsi varier entre 1 μ s et 1 ms selon la taille du nanodiamant [41].

Temps de cohérence (T_2^*, T_2) Le temps de cohérence T_2^* peut être mesuré en réalisant une expérience de précession libre (figure 1.5b). Une première impulsion rf $\frac{\pi}{2}$ – le quart d'une oscillation de Rabi – place le spin dans la superposition cohérente (1.1). L'état de spin après une durée de précession libre τ variable est alors mesuré en appliquant une seconde impulsion rf $\frac{\pi}{2}$ et une impulsion laser de lecture. La courbe obtenue fait apparaître des “franges de Ramsey” qui s'amortissent à cause de la décohérence, avec un temps caractéristique T_2^* [70].

Le temps T_2^* est dominé par l'interaction spin-spin avec les impuretés paramagnétiques environnantes. Dans les nanodiamants, les spins électroniques associés aux impuretés d'azote et aux états de surface induisent des temps de cohérence très courts, de l'ordre

de 100 ns [71]. Dans les diamants massifs CVD, la source dominante de décohérence est le bain de spins nucléaires associés aux atomes de ^{13}C . Dans un diamant d'abondance isotopique naturelle, qui contient 1.1 % d'atomes de ^{13}C , les temps T_2^* sont de l'ordre de quelques microsecondes [70]. Dans un diamant enrichi en ^{12}C [66], T_2^* peut atteindre jusqu'à 500 μs [72], ce qui constitue un record pour un spin à l'état solide.

Ce temps de cohérence peut être prolongé par des protocoles de découplage dynamique permettant de réduire l'effet de certaines sources de décohérence. Le protocole le plus simple est celui de l'écho de spin [30]. Par rapport à la séquence de précession libre, il suffit ici de rajouter une impulsion rf π au milieu de la durée τ de précession libre (figure 1.5c). On obtient une courbe décroissante qui représente la décohérence de l'état de superposition (1.1) suivant un écho de spin, et qui définit le temps caractéristique T_2 .

À l'instar de T_2^* , le temps T_2 est limité par l'interaction avec les impuretés paramagnétiques. Il vaut typiquement de l'ordre de $\sim 1 \mu\text{s}$ dans les nanodiamants [71], $\sim 100 \mu\text{s}$ dans les diamants massifs avec 1.1% de ^{13}C [73], et dépasse 1 ms dans les diamants massifs sans ^{13}C [66].

Des protocoles de découplage dynamique à impulsions multiples permettent de réduire encore la décohérence [74–76]. Ultimement, le temps de cohérence est limité par le temps de relaxation T_1 , lui-même limité par le couplage du centre NV aux phonons [69]. Récemment, un temps de cohérence record de $T_2 \approx T_1/2 \approx 0.5 \text{ s}$ a ainsi été obtenu à 77 K [77].

Les ordres de grandeur des temps T_1 , T_2^* et T_2 à température ambiante sont résumés dans la table 1.1. Sont comparés le cas typique d'un centre NV dans un diamant massif avec 1.1% de ^{13}C , et le cas d'un centre NV situé dans un nanodiamant. Les temps de relaxation sont plus courts d'au moins un ordre de grandeur dans le second cas. Nous verrons plus loin comment ces temps de relaxation affectent la sensibilité du centre NV en tant que magnétomètre (cf. § 1.3.5).

	T_1 (μs)	T_2^* (μs)	T_2 (μs)	D (GHz)	E (MHz)
diamant massif	$\sim 10^3$	$\sim 10^0$	$\sim 10^2$	~ 2.87	~ 0.1
nanodiamant	$10^0 - 10^3$	$\sim 10^{-1}$	$\sim 10^0$	~ 2.87	~ 10

TABLE 1.1 – Valeurs typiques des temps de relaxation T_1 , T_2^* et T_2 de l'état de spin électronique du centre NV dans son niveau fondamental, à température ambiante, ainsi que des paramètres de clivage D et E (définis et discutés plus loin, cf. § 1.3.1). Sont indiqués les cas de centres NV natifs situés dans un diamant massif CVD d'abondance isotopique naturelle, et de centres NV implantés dans des nanodiamants.

1.3 Magnétométrie par spectroscopie de résonance de spin

La méthode la plus simple pour mesurer un champ magnétique statique avec le centre NV consiste à analyser le spectre de résonance de spin, abrégé dans la suite spectre ESR pour *electron spin resonance*, qui dépend du champ magnétique via l'effet Zeeman. Cette nouvelle technique de magnétométrie a été proposée et démontrée en 2008 indépendamment par les groupes de M. Lukin à l'Université de Harvard [29, 30] et de J. Wrachtrup à l'Université de Stuttgart [31]. L'intérêt de cette technique pour l'imagerie magnétique a été aussitôt reconnu [32].

Dans cette section, nous décrivons de façon quantitative la relation entre spectre ESR et champ magnétique, afin de mettre en évidence l'information qui peut être tirée d'un tel spectre. Nous commencerons par détailler le Hamiltonien décrivant le problème (§ 1.3.1). Puis nous analyserons le régime des champs “faibles” (§ 1.3.2) et celui des champs “forts” (§ 1.3.3). Nous discuterons enfin de la direction et du signe du champ mesuré (§ 1.3.4), et de la sensibilité de la mesure (§ 1.3.5).

1.3.1 Hamiltonien de spin

Pour déterminer les fréquences de résonance qui apparaissent dans le spectre ESR du centre NV, il est nécessaire de décrire précisément la structure fine du niveau fondamental, qui est un triplet de spin. Cette structure fine est décrite par un Hamiltonien qui peut être décomposé selon

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z , \quad (1.2)$$

où \mathcal{H}_0 est le Hamiltonien de spin en l'absence de champ magnétique extérieur et \mathcal{H}_Z décrit l'interaction Zeeman induite par un champ magnétique statique. Nous allons d'abord discuter du Hamiltonien intrinsèque \mathcal{H}_0 , avant d'examiner l'effet du champ magnétique.

En l'absence de champ magnétique

En négligeant l'interaction hyperfine du spin électronique avec les spins nucléaires avoisinants [78], le Hamiltonien qui décrit le niveau fondamental du centre NV en l'absence de champ magnétique s'écrit [59]

$$\mathcal{H}_0 = hDS_z^2 + hE(S_x^2 - S_y^2) , \quad (1.3)$$

où h est la constante de Planck, D et E sont deux paramètres caractéristiques du centre NV, et $\{S_x, S_y, S_z\}$ sont les opérateurs de spin $S = 1$ sans dimension. L'axe z correspond à la direction reliant l'atome d'azote à la lacune (figure 1.4a), et définit l'axe de quantification intrinsèque du centre NV [49].

Le premier terme de \mathcal{H}_0 résulte de l'interaction spin-spin entre les deux électrons non appariés du centre NV. Il est responsable du clivage entre l'état $|m_s = 0\rangle$ et le doublet $|m_s = \pm 1\rangle$, où le nombre m_s indique la projection de spin selon l'axe de quantification (axe z). Cette levée partielle de dégénérescence est caractérisée par la constante $D \approx 2.87$ GHz, appelée paramètre de clivage axial¹. Ce paramètre dépend du recouvrement entre les fonctions d'onde des électrons. Il peut donc varier avec les déformations locales du réseau cristallin, soit en raison d'une contrainte mécanique ou d'un champ électrique externe appliqués selon l'axe z [79, 80], soit en raison d'un changement de température [69].

Le second terme intervenant dans \mathcal{H}_0 résulte quant à lui d'une déformation locale du réseau cristallin qui abaisse la symétrie du défaut. Celle-ci peut être causée par une contrainte mécanique ou un champ électrique appliqués perpendiculairement à l'axe z [81]. C'est la direction de cette perturbation transverse qui définit les axes x et y dans l'expression du Hamiltonien (1.3) [59]. Cette déformation, qui lève la dégénérescence au sein du doublet $|m_s = \pm 1\rangle$, est caractérisée par la constante E , appelée paramètre de clivage

1. Le clivage axial du niveau fondamental, noté D_f dans la figure 1.3a, sera noté simplement D ici et dans le reste du manuscrit, sauf indication contraire.

transverse. Les fréquences des transitions de spin en champ nul, notées f_+ et f_- , sont alors données par

$$f_{\pm} = D \pm E . \quad (1.4)$$

Les ordres de grandeur de D et E sont indiqués dans la table 1.1 pour différents types de matériaux. Pour des centres NV placés dans des diamants massifs synthétisés par la méthode CVD, on a typiquement $D \approx 2.87$ GHz et $E \approx 100$ kHz. Dans les nanodiamants, E peut atteindre plusieurs dizaines de MHz et D peut varier d'autant en raison de fortes contraintes mécaniques induites à la surface. Cette différence est illustrée dans la figure 1.6, qui montre des spectres ESR dans ces deux cas. Le clivage transverse apparaît clairement dans le spectre enregistré pour un centre NV dans un nanodiamant, tandis qu'il n'est pas discernable dans le diamant massif.

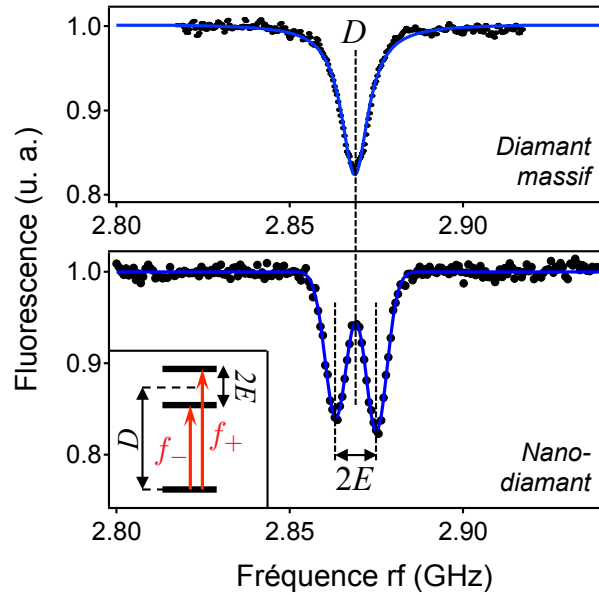


FIGURE 1.6 – Spectres ESR enregistrés en champ magnétique nul pour un centre NV natif situé dans un diamant massif CVD de haute pureté (spectre du haut) et pour un centre NV situé dans un nanodiamant (spectre du bas). Les lignes continues sont des ajustements par une somme de deux fonctions gaussiennes, dont les centres correspondent aux fréquences de résonance f_- et f_+ (cf. définition en insert).

Effet du champ magnétique

L'interaction du moment magnétique du centre NV, dans son niveau électronique fondamental, avec un champ magnétique \mathbf{B} est décrite par le Hamiltonien Zeeman

$$\mathcal{H}_Z = g_{\text{NV}} \mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} , \quad (1.5)$$

où g_{NV} est le facteur de Landé du centre NV, μ_B est le magnéton de Bohr, et $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z)$ est le vecteur des opérateurs de spin. Bien qu'une légère anisotropie dans le terme Zeeman ait été observée, c'est-à-dire que g_{NV} dépend en fait de la direction de \mathbf{B} , nous la négligerons car la variation mesurée est de l'ordre de l'incertitude expérimentale [82]. L'interaction Zeeman est ainsi caractérisée par un facteur de Landé isotrope

$g_{\text{NV}} = 2.0030(3)$, qui par ailleurs est peu différent de celui de l'électron libre $g = 2.0023(1)$. Cela traduit le fait que le couplage spin-orbite est très faible dans le niveau électronique fondamental, justifiant ainsi son omission dans le Hamiltonien \mathcal{H}_0 .

Dans la base des états propres de S_z $\{|m_s = +1\rangle, |m_s = 0\rangle, |m_s = -1\rangle\}$, les opérateurs de spin s'écrivent

$$S_x = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad S_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 \\ i & 0 & -i \\ 0 & i & 0 \end{pmatrix}, \quad S_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (1.6)$$

En exprimant le champ magnétique \mathbf{B} à l'aide de son amplitude B et de ses angles sphériques (θ, ϕ) dans le référentiel cartésien xyz (figure 1.7a), le Hamiltonien total (1.2) s'écrit alors sous la forme matricielle

$$\mathcal{H} = h \begin{pmatrix} D + \tilde{B} \cos \theta & \tilde{B} \sin \theta e^{-i\phi}/\sqrt{2} & E \\ \tilde{B} \sin \theta e^{i\phi}/\sqrt{2} & 0 & \tilde{B} \sin \theta e^{-i\phi}/\sqrt{2} \\ E & \tilde{B} \sin \theta e^{i\phi}/\sqrt{2} & D - \tilde{B} \cos \theta \end{pmatrix}, \quad (1.7)$$

où l'on a introduit $\tilde{B} = \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h}B$ avec $B = \|\mathbf{B}\|$ et $\frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} = 28.035(5)$ GHz/T.

En diagonalisant numériquement le Hamiltonien (1.7), on obtient les énergies propres $\{E_1, E_2, E_3\}$, classées par ordre d'énergie croissante, et les vecteurs propres $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ associés. Les fréquences de résonance qui apparaissent dans le spectre ESR sont définies comme (figure 1.7b)

$$\begin{cases} f_+ &= (E_3 - E_1)/h \\ f_- &= (E_2 - E_1)/h \end{cases}. \quad (1.8)$$

Ces deux fréquences sont calculées dans les figures 1.7c à 1.7e en fonction de l'amplitude du champ magnétique B pour trois angles θ différents. Les paramètres de clivage sont fixés à $D = 2.87$ GHz et $E = 5$ MHz, correspondant à la situation typique d'un centre NV dans un nanodiamant. Notons que l'angle ϕ , pris égal à 0 pour ce calcul, a en général une influence négligeable sur le résultat car $E \ll D$.

Pour discuter des différents régimes observés en fonction de B et θ , il est utile d'écrire le Hamiltonien (1.2) comme la somme

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\parallel} + \mathcal{H}_{\perp}, \quad (1.9)$$

en définissant

$$\mathcal{H}_{\parallel} = hDS_z^2 + hE(S_x^2 - S_y^2) + g_{\text{NV}}\mu_B B_z S_z \quad (1.10)$$

$$\mathcal{H}_{\perp} = g_{\text{NV}}\mu_B (B_x S_x + B_y S_y). \quad (1.11)$$

Nous allons d'abord examiner le régime des champs "faibles", tel que $\mathcal{H}_{\perp} \ll \mathcal{H}_{\parallel}$, avant d'analyser l'effet de la composante transverse \mathcal{H}_{\perp} .

1.3.2 Régime des champs "faibles"

Dans la suite, nous utiliserons les notations

$$B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| = |B_z| \quad (1.12)$$

$$B_{\perp} = \|\mathbf{B} \times \mathbf{u}_{\text{NV}}\| = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}, \quad (1.13)$$

qui désignent les composantes parallèle et perpendiculaire du champ magnétique par rapport à l'axe du centre NV, caractérisé par le vecteur unitaire \mathbf{u}_{NV} (figure 1.7a). Le régime des champs faibles correspond au régime où $\mathcal{H}_\perp \ll \mathcal{H}_\parallel$, c'est-à-dire

$$B_\perp \ll \left| \frac{hD}{g_{\text{NV}}\mu_B} - B_{\text{NV}} \right|. \quad (1.14)$$

Dans ce cas, l'axe de quantification reste fixé par la symétrie du centre NV, et en particulier l'état $|m_s = 0\rangle$ reste état propre de \mathcal{H} . Les fréquences de résonance ne dépendent

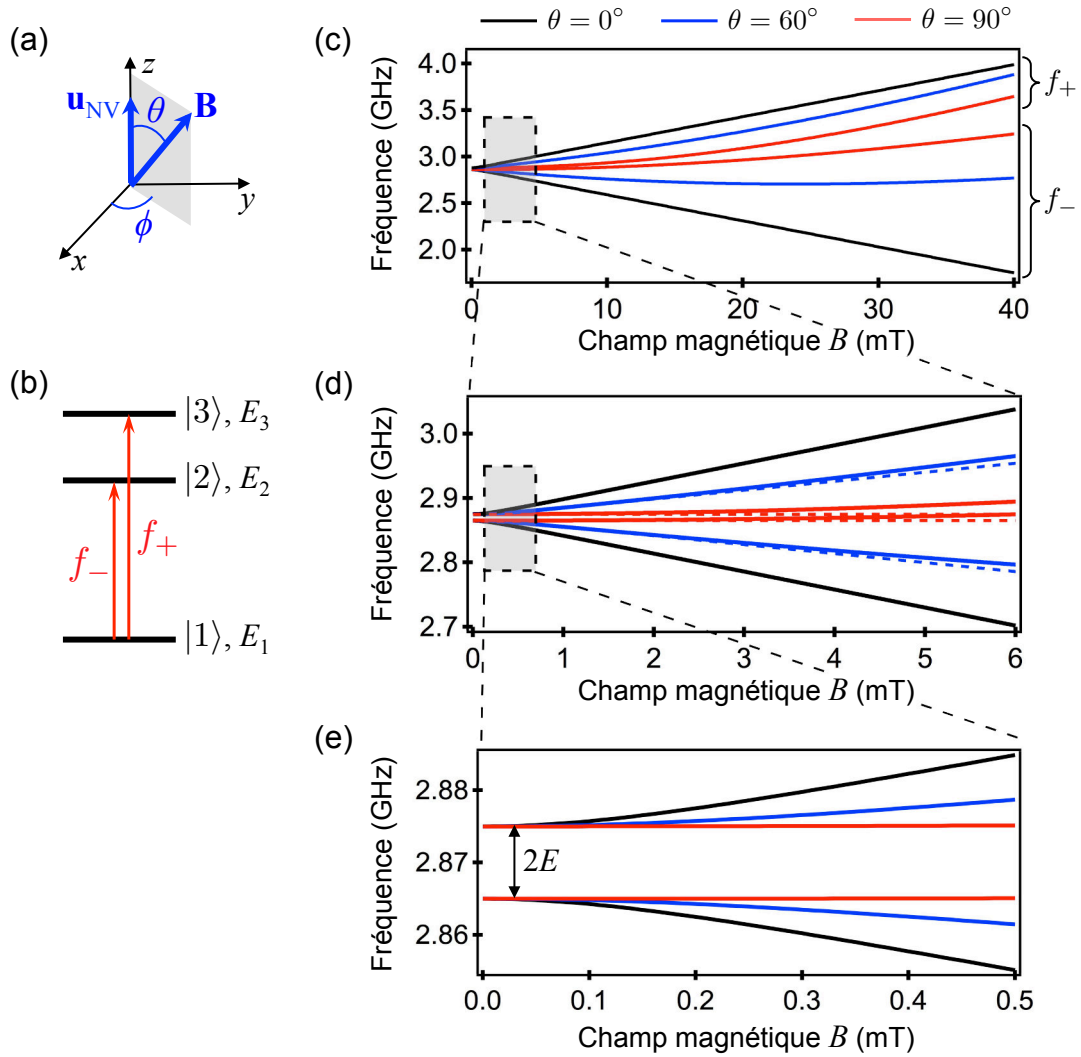


FIGURE 1.7 – (a) Le champ magnétique \mathbf{B} appliqué est caractérisé par les angles sphériques (θ, ϕ) dans le référentiel xyz associé au centre NV, où z est parallèle à la direction NV, de vecteur unitaire \mathbf{u}_{NV} . (b) f_- et f_+ sont les fréquences de transition entre l'état $|1\rangle$, de plus basse énergie, et les états $|2\rangle$ et $|3\rangle$, respectivement, dans le niveau fondamental du centre NV. (c-e) Fréquences de résonance f_+ et f_- en fonction de l'amplitude du champ magnétique B pour trois angles θ différents, calculées en diagonalisant le Hamiltonien (1.7) avec $D = 2.87$ GHz et $E = 5$ MHz. Dans (d), les lignes pointillées correspondent à l'approximation (1.15).

alors que de B_{NV} et s'écrivent simplement

$$f_{\pm}(B_{\text{NV}}) \approx D \pm \sqrt{E^2 + \left(\frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h}B_{\text{NV}}\right)^2}. \quad (1.15)$$

Cette formule est exacte lorsque $B_{\perp} = 0$, et constitue une très bonne approximation pour les champs d'amplitude transverse telle que $B_{\perp} \ll \frac{hD}{g_{\text{NV}}\mu_B} \approx 100$ mT. Ceci est illustré dans les figures 1.7d et 1.7e, qui montrent un bon accord entre le calcul exact (lignes continues) et la formule approchée (lignes pointillées) pour des amplitudes $B \lesssim 5$ mT. Par conséquent, on peut dans ce régime utiliser l'expression (1.15) pour déduire la valeur de la composante B_{NV} du champ magnétique. Il suffit pour cela de mesurer par spectroscopie ESR l'une des deux fréquences de résonance f_+ ou f_- , et d'utiliser la formule inverse

$$B_{\text{NV}} \approx \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \sqrt{(f_{\pm} - D)^2 - E^2}. \quad (1.16)$$

La formule (1.15) prédit un régime linéaire $f_{\pm}(B_{\text{NV}}) \approx D \pm \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h}B_{\text{NV}}$ lorsque $B_{\text{NV}} \gg \frac{hE}{g_{\text{NV}}\mu_B}$. Ce régime linéaire est clairement visible dans la figure 1.7d et correspond au cas où les états propres du Hamiltonien sont les états propres de l'opérateur S_z , soit

$$\begin{cases} |1\rangle &= |m_s = 0\rangle \\ |2\rangle &= |m_s = -1\rangle \\ |3\rangle &= |m_s = +1\rangle \end{cases}. \quad (1.17)$$

À l'inverse, il existe un effet d'anti-croisement en $B_{\text{NV}} = 0$ où l'on a $f_{\pm} = D \pm E$, comme le montre la figure 1.7e. Les états propres sont alors

$$\begin{cases} |1\rangle &= |m_s = 0\rangle \\ |2\rangle &= (|m_s = +1\rangle - |m_s = -1\rangle)/\sqrt{2} \\ |3\rangle &= (|m_s = +1\rangle + |m_s = -1\rangle)/\sqrt{2} \end{cases}, \quad (1.18)$$

c'est-à-dire que les états de spin $|m_s = \pm 1\rangle$ sont maximalelement mélangés. Du fait de cet anti-croisement, gouverné par le paramètre d'asymétrie E , le centre NV est peu sensible aux variations de champ dans le régime $B_{\text{NV}} \lesssim \frac{hE}{g_{\text{NV}}\mu_B}$. Dans les nanodiamants, on a typiquement $E \sim 10$ MHz (cf. table 1.1 et figure 1.6), ce qui implique que le centre NV est peu sensible aux champs nets inférieurs à ~ 0.2 mT. Pour détecter des petites variations de champ, il est donc parfois nécessaire d'ajouter un champ de biais afin de sortir de la zone d'anti-croisement.

1.3.3 Régime des champs “forts”

La formule (1.15) n'est plus valide dès lors que la condition (1.14) n'est plus vérifiée. Dans ce régime de champ “fort”, précisément pour des amplitudes de champ transverse $B_{\perp} \gtrsim 5$ mT, le nombre m_s n'est plus un bon nombre quantique car la direction de \mathbf{B} tend à imposer l'axe de quantification du système. Les fréquences de résonance n'évoluent alors plus de manière symétrique par rapport à D . Cet effet, qui est clairement visible dans la figure 1.7c lorsque $\theta \neq 0$, est lié aux termes non diagonaux en $\tilde{B} \sin \theta$ dans le Hamiltonien (1.7), qui mélangent les trois états de spin $|m_s = 0, \pm 1\rangle$. Par exemple, pour le cas extrême $\theta = 90^\circ$ et dans la limite $\tilde{B} \gg D$, les états propres de \mathcal{H} sont

$$\begin{cases} |1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}|m_s = 0\rangle + \frac{1}{2}(|m_s = +1\rangle + |m_s = -1\rangle) \\ |2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = +1\rangle - |m_s = -1\rangle) \\ |3\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}|m_s = 0\rangle - \frac{1}{2}(|m_s = +1\rangle + |m_s = -1\rangle) \end{cases}, \quad (1.19)$$

illustrant le mélange de l'état de spin $|m_s = 0\rangle$ avec le doublet $|m_s = \pm 1\rangle$, caractéristique du régime de fort champ transverse.

Dans ce régime, la mesure de l'une des deux fréquences de résonance seulement n'est plus suffisante pour déterminer B_{NV} . Par ailleurs, il est clair que f_+ et f_- ne dépendent plus seulement de la projection B_{NV} mais aussi de l'angle θ . À partir du Hamiltonien (1.7), on peut obtenir l'équation caractéristique pour les énergies propres

$$x^3 - \left(\frac{D^2}{3} + E^2 + \tilde{B}^2 \right) x - \frac{\tilde{B}^2}{2} \Delta - \frac{D}{6} (4E^2 + \tilde{B}^2) + \frac{2D^3}{27} = 0, \quad (1.20)$$

où l'on a posé $\Delta = D \cos 2\theta + 2E \cos 2\phi \sin^2 \theta$. Comme $E \ll D$, on peut utiliser l'approximation $\Delta \approx D \cos 2\theta$, auquel cas l'équation (1.20) ne dépend plus de l'angle ϕ . En résolvant l'équation (1.20), il est alors possible d'exprimer \tilde{B}^2 et Δ en fonction de f_+ et f_- [31] :

$$\begin{aligned} \tilde{B}^2 &= \frac{1}{3} (f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- - D^2 - 3E^2) \\ \Delta &= \frac{7D^3 + 2(f_+ + f_-)(2(f_+^2 + f_-^2) - 5f_+ f_- - 9E^2) - 3D(f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- + 9E^2)}{9(f_+^2 + f_-^2 - f_+ f_- - D^2 - 3E^2)}. \end{aligned} \quad (1.21)$$

De \tilde{B}^2 on peut déduire l'amplitude du champ B , et de Δ on peut déduire $\cos 2\theta$ et donc l'angle θ à π près.

Ainsi, en mesurant les deux fréquences de résonance f_+ et f_- , il est possible de déterminer le couple (B, θ) , ou de manière équivalente le couple $(B_{\text{NV}}, B_{\perp})$. Ceci est illustré dans la figure 1.8, où un champ \mathbf{B} est appliqué avec un électro-aimant selon un angle θ fixé et inconnu a priori. L'intensité du courant I_B alimentant l'électro-aimant correspond à une amplitude B selon une relation linéaire (figure 1.8a). La figure 1.8b montre des spectres ESR enregistrés pour différentes intensités I_B , et la figure 1.8c indique l'évolution des fréquences de résonance f_{\pm} en fonction de I_B . En utilisant les relations (1.21), on déduit l'angle θ , qui vaut ici $\theta \approx 74^\circ$, ainsi que le coefficient de conversion courant-champ, qui vaut $\frac{B}{I_B} \approx 19 \text{ mT/A}$.

La figure 1.8b illustre une autre caractéristique du régime des champs forts. En plus du décalage asymétrique des fréquences de résonance, le contraste \mathcal{C} des résonances de spin diminue progressivement lorsque B augmente. Dans le présent exemple, il passe ainsi de plus de 15% en champ nul à moins de 5% pour $B = 20 \text{ mT}$. La mesure du champ est donc de moins en moins précise à mesure que le champ transverse B_{\perp} augmente. En pratique, cela limite l'applicabilité de la magnétométrie par spectroscopie ESR à des champs d'amplitude inférieure typiquement à 20 mT. Cet effet sera analysé en détail dans la section 1.4.

1.3.4 Direction et signe du champ mesuré

Dans les sections 1.3.2 et 1.3.3, nous avons vu comment, à partir de la mesure de f_+ ou f_- en régime de champ faible, il est possible de déduire la valeur de B_{NV} . Lorsque le champ transverse est suffisamment fort pour induire une asymétrie mesurable entre f_+ et f_- et suffisamment faible pour que le contraste optique permette la mesure de f_{\pm} , soit typiquement dans la gamme $5 \lesssim B_{\perp} \lesssim 20 \text{ mT}$, alors on peut également déduire la composante transverse B_{\perp} . Cependant, une ambiguïté subsiste quant au signe des composantes B_{NV} et B_{\perp} .

Pour illustrer cette ambiguïté, nous considérons le cas des champs faibles. D'après l'expression (1.16), seule la valeur absolue $B_{\text{NV}} = |B_z|$ du champ est déterminée. Le signe

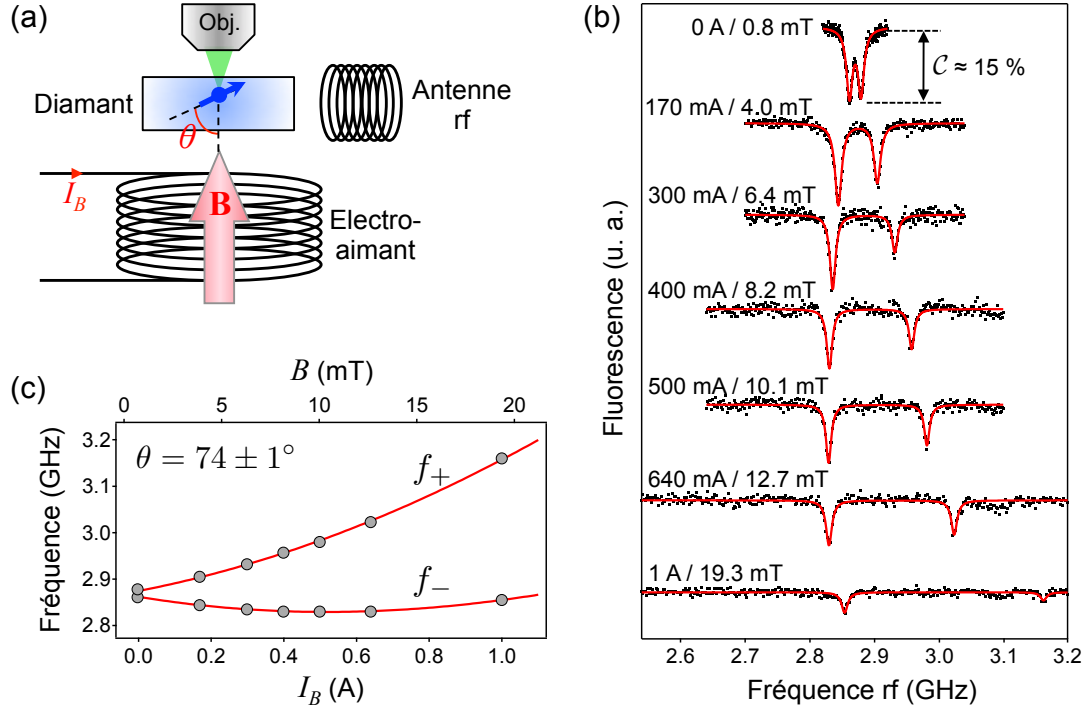


FIGURE 1.8 – (a) Un champ magnétique \mathbf{B} est appliqué avec un électro-aimant selon une direction fixe formant un angle θ par rapport à l’axe du centre NV. Le courant I_B permet de varier l’amplitude B du champ. (a) Spectres ESR enregistrés pour différentes courants I_B pour un centre NV individuel dans un diamant massif. Les lignes continues sont des ajustements par une somme de deux fonctions lorentziennes. Les différents spectres sont décalés verticalement pour plus de clarté. Le contraste des raies vaut $C \approx 15\%$ pour les faibles amplitudes de champ. (b) Fréquences de résonance f_+ et f_- en fonction de I_B , extraites des spectres en (b). Les lignes continues sont les fréquences calculées après avoir déterminé θ ainsi que le coefficient $\frac{B}{I_B}$ à l’aide des équations (1.21).

de B_z n’est généralement pas connu car le spectre ESR est invariant par rapport à un changement de signe, puisqu’il n’y a pas de distinction a priori entre les raies $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ et $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = -1\rangle$. Néanmoins, cette distinction peut être réalisée par deux méthodes différentes.

La première consiste à utiliser une onde rf polarisée circulairement. Par exemple, une onde de polarisation σ^+ , définie par rapport à l’axe z du centre NV, n’excite que la transition $|m_s = 0\rangle \leftrightarrow |m_s = +1\rangle$ par conservation de la projection du moment cinétique, résultant en un spectre ESR laissant apparaître une seule résonance f_r . Si $f_r > D$ (resp. $f_r < D$), alors $B_z > 0$ (resp. $B_z < 0$). Cette règle de sélection a été vérifiée expérimentalement pour le centre NV en 2007 [83], et permet donc de mesurer non seulement l’amplitude de la composante B_z mais aussi son signe. Cependant, cette technique nécessite une antenne rf sophistiquée, et ne sera donc pas utilisée dans la suite.

Une autre méthode pour obtenir le signe de B_z consiste à ajouter un champ de biais $B_{z,0}$ de signe connu et à mesurer le spectre ESR avec et sans ce champ. Si $B_{z,0}$ est de signe identique (resp. différent) à B_z , alors la fréquence de résonance supérieure f_+ augmente (resp. diminue) lorsque le champ de biais est appliqué. Cette technique est simple à mettre en œuvre expérimentalement car un faible champ magnétique suffit, typiquement 1 mT.

Toutefois, ajouter un champ magnétique externe est parfois non désirable lorsque l'on souhaite caractériser une structure magnétique, car celle-ci peut être perturbée par le champ ajouté.

Alors qu'un seul centre NV ne donne en général accès qu'à une seule composante du champ dans le régime des champs faibles, B_{NV} , il est possible de mesurer les autres composantes du champ en utilisant plusieurs centres NV d'orientations différentes. Cette idée a été mise à profit dans les références [84, 85] pour réaliser un magnétomètre vectoriel. Cependant, l'utilisation de plusieurs centres NV dans un même diamant dégrade la résolution spatiale car la mesure des différentes composantes est réalisée à des positions différentes. Aussi, nous ne considérerons dans la suite que le cas où un seul centre NV à la fois est employé, fournissant la valeur d'une seule projection du champ $B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$, avec l'axe \mathbf{u}_{NV} fixé. Des mesures successives avec différentes orientations de l'axe NV permettent alors de mesurer différentes projections du champ, comme nous l'illustrerons au chapitre 2 (cf. § 2.3.4).

1.3.5 Protocoles de mesure et sensibilité

Une caractéristique importante d'un magnétomètre est sa sensibilité au champ magnétique, c'est-à-dire la variation minimum de champ détectable en un temps d'acquisition donné. Dans le cas du magnétomètre à centre NV, celle-ci est limitée principalement par le bruit de grenaille du processus de comptage des photons [10, 30]. Ce bruit est de type poissonnien, c'est-à-dire qu'à un nombre de photons moyen \mathcal{S} est associé un écart-type $\delta\mathcal{S} = \sqrt{\mathcal{S}}$. Si \mathcal{R} est le taux de fluorescence (nombre de photons détectés par unité de temps), le nombre de photons détectés en un temps d'intégration Δt est $\mathcal{S} = \mathcal{R}\Delta t$, ce qui implique que le bruit relatif $\delta\mathcal{S}/\mathcal{S}$ est inversement proportionnel à $\sqrt{\Delta t}$. On définit alors la sensibilité comme le produit

$$\eta = \delta B \sqrt{\Delta t} , \quad (1.22)$$

exprimée en $\text{T} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$, où δB est la plus petite variation de champ mesurable en un temps d'intégration Δt avec un rapport signal-sur-bruit égal à 1.

En enregistrant des spectres ESR, une petite variation δB peut être détectée en mesurant le signal $\mathcal{S}(f)$ à fréquence rf f fixée (figure 1.9a). On se place ici dans le régime linéaire, c'est-à-dire que la fréquence de résonance f_r et le champ projeté B_{NV} sont reliés par la relation $f_r = D \pm \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} B_{\text{NV}}$. Dans ce cas, une petite variation de champ δB correspond à une petite variation de fréquence de résonance $\delta f = \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} \delta B$. La sensibilité s'écrit alors

$$\begin{aligned} \eta &= \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \delta f \sqrt{\Delta t} \\ &= \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \frac{\delta\mathcal{S}}{\left| \frac{\partial\mathcal{S}}{\partial f} \right|} \sqrt{\Delta t} , \end{aligned} \quad (1.23)$$

où $\delta\mathcal{S}$ est le bruit de mesure et $\frac{\partial\mathcal{S}}{\partial f}$ est la dérivée du signal à la fréquence f choisie. En notant \mathcal{R} le taux de fluorescence hors résonance, \mathcal{C} le contraste de la résonance et Δf_r sa largeur à mi-hauteur (figure 1.9a), la sensibilité peut être écrite selon [33]

$$\eta \approx \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \frac{\Delta f_r}{\mathcal{C}\sqrt{\mathcal{R}}} . \quad (1.24)$$

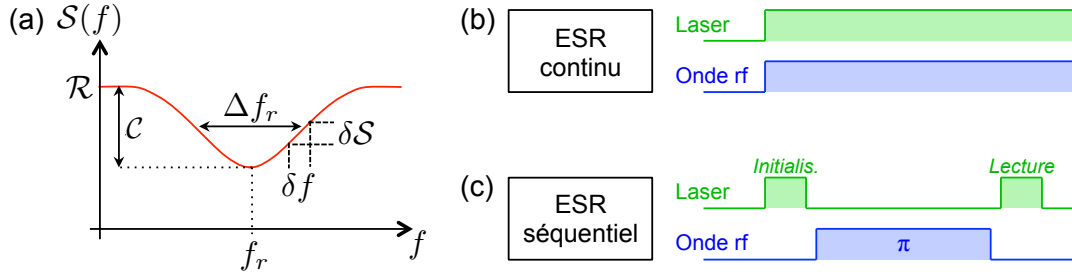


FIGURE 1.9 – (a) La raie de résonance dans un spectre ESR détecté optiquement est caractérisée par une position f_r , une largeur Δf_r et un contraste relatif \mathcal{C} . Un bruit de mesure δS se traduit en une erreur δf sur la détermination de f_r . (b,c) Séquences temporelles correspondant à deux protocoles de mesure de la résonance f_r . Dans (b), la fréquence rf est balayée pendant que le laser et l’onde rf sont appliqués en continu. Dans (c), le laser et l’onde rf sont appliqués séquentiellement, une impulsion rf π séparant deux impulsions laser d’initialisation et de lecture.

Tandis que \mathcal{C} est donné par les paramètres photophysiques du centre NV (cf. § 1.2) et ne peut pas être augmenté au-delà de $\approx 20\%$, les paramètres \mathcal{R} et Δf_r peuvent varier dans une certaine mesure. \mathcal{R} est limité d’une part par le taux de transition radiative du centre NV, et d’autre part par l’efficacité de collection du système optique. Le taux de transition radiative peut être augmenté en utilisant une cavité résonante qui met à profit l’effet Purcell [86], tandis que l’efficacité de collection peut être optimisée en employant des microstructures photoniques adaptées [87, 88]. On peut ainsi atteindre $\mathcal{R} \sim 10^6 \text{ s}^{-1}$, contre $\mathcal{R} \sim 10^5 \text{ s}^{-1}$ pour un centre NV dans un diamant massif non structuré ou dans un nanodiamant avec un microscope confocal standard.

La largeur de raie Δf_r , quant à elle, peut varier significativement selon le protocole de mesure employé. La limite intrinsèque de Δf_r est liée au temps de cohérence T_2^* de l’état de spin, qui impose une borne inférieure $\Delta f_r \gtrsim \frac{1}{T_2^*}$. Cependant, cette largeur naturelle ne peut être atteinte que dans des conditions d’acquisition bien particulières. En effet, les résonances observées par spectroscopie ESR sont le fruit d’une convolution entre la raie naturelle et la réponse du protocole de mesure. La manière la plus simple d’obtenir un spectre ESR est de balayer la fréquence rf tout en appliquant le laser et l’onde rf en continu (figure 1.9b). Dans ce cas, la largeur de raie est dominée par un effet d’élargissement dû à la fois au laser et à l’onde rf [89], ce qui donne typiquement $\Delta f_r \approx 20 \text{ MHz}$. En prenant $\mathcal{R} = 10^5 \text{ s}^{-1}$ et $\mathcal{C} = 0.2$, on trouve $\eta \approx 10 \text{ } \mu\text{T} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$. Cela signifie que le magnétomètre à centre NV est capable de détecter une variation de champ de l’ordre de 0.2 mT en 1 ms d’intégration, et de l’ordre de $2 \text{ } \mu\text{T}$ en 10 s .

Pour éviter l’effet d’élargissement lié au laser, il est possible de découpler l’action du laser de celle de l’onde rf [89]. Pour cela, on applique la séquence schématisée dans la figure 1.9c. Une première impulsion laser initialise le centre NV dans l’état $|m_s = 0\rangle$. Une impulsion rf de durée T_π excite alors l’état de spin, avant qu’une deuxième impulsion laser ne soit utilisée pour lire l’état de spin final. La durée T_π est choisie pour que l’impulsion induise une demi-oscillation de Rabi si l’onde rf est à résonance (impulsion π). À résonance, le spin est complètement transféré dans l’état $|m_s = \pm 1\rangle$, et un niveau bas de fluorescence est observé lors de l’impulsion de lecture. Avec ce protocole, le spectre ESR obtenu est le résultat d’une convolution entre les raies naturelles, de largeur $\sim \frac{1}{T_2^*}$, et une fonction sinc

de largeur $\sim \frac{1}{T_\pi}$. En augmentant T_π , c'est-à-dire en diminuant l'intensité de l'onde rf, on peut ainsi atteindre la largeur naturelle $\Delta f_r \approx \frac{1}{T_\pi} \approx \frac{1}{T_2^*}$.

La contrepartie de ce protocole est que le niveau de signal est réduit puisque le laser n'est plus appliqué en continu. Le taux moyen de fluorescence est en effet réduit d'un facteur $\approx t_L/T_\pi$, où t_L est la durée de l'impulsion laser de lecture, choisie égale à ≈ 300 ns pour optimiser le rapport signal-sur-bruit [89] (cf. § 4.2.1). La sensibilité optimale s'exprime finalement

$$\eta_{\text{opt}} \approx \frac{h}{g_{\text{NV}} \mu_B} \frac{1}{\mathcal{C} \sqrt{\mathcal{R} t_L T_2^*}}. \quad (1.25)$$

Notons que cette sensibilité peut être améliorée d'un facteur \sqrt{N} en employant un ensemble de N centres NV au lieu d'un seul, au détriment de la résolution spatiale [33]. De plus, l'utilisation de protocoles de découplage dynamique avancés permet de mesurer des champs fluctuants avec une sensibilité améliorée d'un facteur $\sqrt{T_2/T_2^*}$, où T_2 est le temps de cohérence selon le protocole considéré [30, 74].

Dans les chapitres 2, 3 et 4, nous emploierons des centres NV situés dans des nanodiamants de taille ≈ 50 nm. En prenant une valeur typique $T_2^* \sim 100$ ns (cf. § 1.2.3), on prédit une sensibilité $\eta_{\text{opt}} \sim 3 \mu\text{T} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ par spectroscopie ESR séquentielle, contre $\eta \sim 10 \mu\text{T} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ par spectroscopie continue, toutes choses égales par ailleurs. Contrairement aux centres NV dans les diamants massifs, où la sensibilité peut atteindre jusqu'à $\eta_{\text{opt}} \sim 40 \text{ nT} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ avec un temps de cohérence $T_2^* \sim 500 \mu\text{s}$ [72], le gain de la méthode séquentielle est relativement modeste pour les nanodiamants car les raies ESR sont intrinsèquement larges, à cause d'un faible temps de cohérence. Par conséquent, nous emploierons exclusivement la méthode de spectroscopie ESR continue pour mesurer le champ magnétique, qui est plus simple à mettre en œuvre expérimentalement.

1.4 Magnétométrie par extinction de fluorescence

Dans la section 1.3, nous avons analysé l'évolution des fréquences de transition de spin en fonction du champ magnétique. Nous avons vu notamment que dans le régime des forts champs transverses, le contraste des raies ESR diminue lorsque le champ augmente (cf. figure 1.8b), ce qui limite la magnétométrie par spectroscopie ESR aux champs d'amplitude $\lesssim 20$ mT typiquement.

Dans cette section, nous introduisons un modèle de la photodynamique du centre NV qui permet de rendre compte quantitativement de cet effet (§ 1.4.1). Le modèle est confronté à des mesures de fluorescence résolues en temps, ce qui permet d'extraire les taux de transition entre les différents états du centre NV (§ 1.4.2). Nous démontrons, à la fois théoriquement et expérimentalement, qu'un fort champ magnétique transverse a pour effets de (i) diminuer l'intensité moyenne de fluorescence, (ii) diminuer le temps de vie moyen du niveau excité et (iii) diminuer le contraste optique des raies ESR. Ce modèle suggère ainsi une nouvelle méthode de magnétométrie basée uniquement sur les propriétés magnéto-optiques du centre NV [34]. Les implications de ces résultats pour la mesure et l'imagerie des champs magnétiques dans le régime des forts champs seront discutées (§ 1.4.3).

1.4.1 Modèle de la photodynamique du centre NV dans un champ magnétique statique

Photodynamique en l'absence de champ magnétique

Considérons tout d'abord un centre NV sous excitation optique en l'absence de champ magnétique. La structure des niveaux d'énergie qui rend compte des observations expérimentales comprend les triplets de spin dans les niveaux fondamental et excité, ainsi que l'état singulet métastable (figure 1.10a). Les transitions optiques ont lieu entre les deux triplets de spin, tandis que le singulet est impliqué dans le chemin de relaxation non radiative (cf. § 1.2.2). Les états propres sont notés $|i^0\rangle$, avec $i = 1..7$, l'exposant rappelant que $B = 0$. En négligeant le clivage transverse ($E = 0$), ces états propres correspondent à des projections de spin m_s bien définies, selon l'axe de quantification intrinsèque du centre NV : les états $|1^0\rangle$, $|2^0\rangle$ et $|3^0\rangle$ (resp. $|4^0\rangle$, $|5^0\rangle$ et $|6^0\rangle$) correspondent aux projections de spin $m_s = 0, -1$ et $+1$ du niveau fondamental (resp. excité). L'état métastable est lui noté $|7^0\rangle$. Le taux de transition de $|i^0\rangle$ vers $|j^0\rangle$ est noté k_{ij}^0 .

En l'absence de champ magnétique, nous sommes en fait ramenés à un système à cinq niveaux, puisque les états $|2^0\rangle$ et $|3^0\rangle$ d'une part, et $|5^0\rangle$ et $|6^0\rangle$ d'autre part, sont dégénérés. Un tel modèle à cinq niveaux a été utilisé dès 2006 par Manson et collègues pour décrire la dynamique du centre NV sous pompage optique [61], puis plus récemment par Robledo et collègues [62]. Ces derniers ont étudié la dynamique de spin lors des cycles optiques

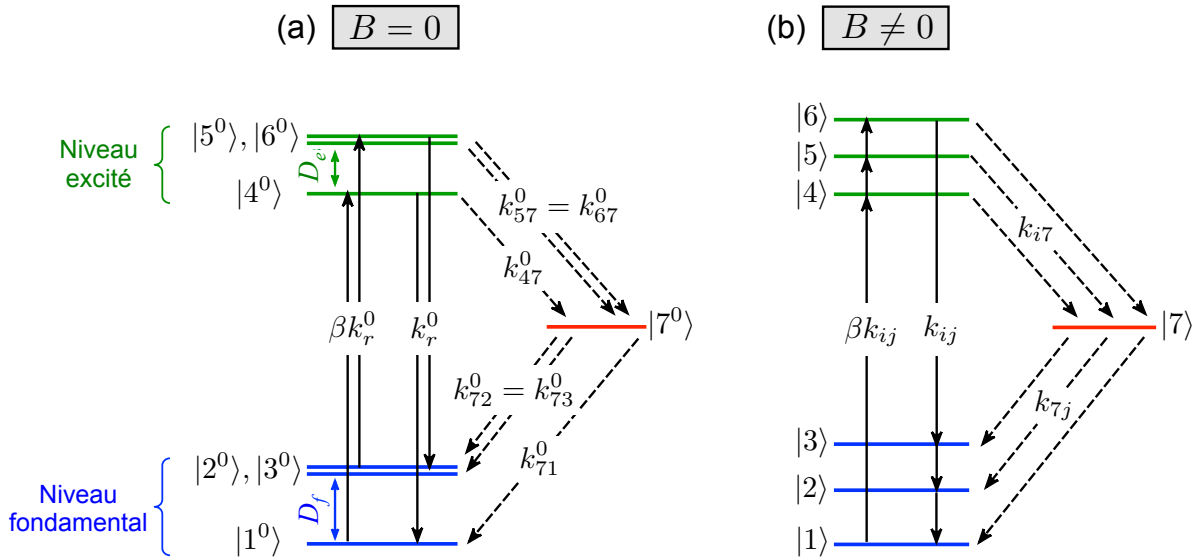


FIGURE 1.10 – (a,b) Structure à sept niveaux d'énergie considérée pour modéliser la photodynamique du centre NV à température ambiante. Les niveaux fondamental et excité, qui sont des triplets de spin, sont liés par des transitions radiatives conservant la projection de spin m_s (flèches continues), tandis que le niveau métastable $|7\rangle$ fournit un chemin de relaxation non radiative (flèches pointillées). Les notations sont définies dans le texte. (a) En champ magnétique nul, cinq paramètres intrinsèques $\{k_r^0, k_{47}^0, k_{57}^0, k_{71}^0, k_{72}^0\}$ sont utilisés pour décrire la dynamique du centre NV. (b) Pour un champ \mathbf{B} donné, tous les taux de transition k_{ij} sont susceptibles d'être non nuls, en raison du mélange des états de spin à la fois dans le niveau fondamental et dans le niveau excité.

par des mesures de luminescence résolues en temps combinées à un contrôle de l'état de spin par excitation rf. Nous reprenons ici leur modèle pour décrire la photodynamique du centre NV en champ nul.

Nous supposons donc que :

1. Les transitions optiques entre les deux triplets conservent la projection de spin ($\Delta m_s = 0$).
2. Les taux de transition radiative sont indépendants de la valeur de m_s , soit $k_{41}^0 = k_{52}^0 = k_{63}^0 = k_r^0$.
3. Les taux de pompage optique du niveau fondamental vers le niveau excité sont proportionnels aux taux de relaxation correspondants, soit $k_{ji}^0 = \beta k_{ij}^0$ pour $j = 1..3$ et $i = 4..6$, où β est le paramètre de pompage optique, qui dépend éventuellement du temps.
4. Les taux de transition non radiative entre l'état métastable et les niveaux triplets ne dépendent que de la valeur absolue de m_s , soit $k_{57}^0 = k_{67}^0$ et $k_{72}^0 = k_{73}^0$.

Suivant ces hypothèses, la dynamique du centre NV sous pompage optique est décrite, en champ magnétique nul, par cinq paramètres intrinsèques au centre NV, à savoir $\{k_r^0, k_{47}^0, k_{57}^0, k_{71}^0, k_{72}^0\}$, et un paramètre extrinsèque β lié à l'intensité du pompage optique. Ces notations sont résumées dans la figure 1.10a.

Effet d'un champ magnétique

Nous décrivons maintenant une procédure permettant de prendre en compte l'effet d'un champ magnétique extérieur \mathbf{B} sur la dynamique du centre NV. Comme nous l'avons vu dans la section 1.3, le champ \mathbf{B} mélange en général les états de spin du niveau fondamental, de par sa composante B_\perp transverse à l'axe de quantification intrinsèque. Un tel mélange a également lieu dans le niveau excité, la seule différence notable étant que le paramètre de clivage axial D est deux fois moins grand que dans le fondamental [58]. Nous considérons donc le modèle à sept niveaux de la figure 1.10b, dans lequel tous les taux de transitions k_{ij} sont susceptibles d'être différents et non nuls. La procédure consiste alors à :

1. exprimer les états propres $\{|i\rangle\}$ en fonction des états de base $\{|i^0\rangle\}$ et du champ \mathbf{B} ;
2. calculer les taux de transition $\{k_{ij}\}$ en fonctions des taux en champ nul $\{k_{ij}^0\}$ et des expressions obtenues à l'étape 1.

La dynamique est alors entièrement déterminée par les taux $\{k_{ij}\}$ obtenus, qui ne dépendent que des taux en champ nul $\{k_{ij}^0\}$, du pompage optique β , et du champ magnétique \mathbf{B} . La résolution des équations de taux classiques permet alors de prédire le taux de photons émis, le temps de vie des états excités, les populations de chaque état, ou encore le contraste ESR maximum. Nous allons maintenant établir les expressions de ces quantités physiques.

Nous décrivons la structure fine des triplets fondamental et excité par un Hamiltonien de la forme

$$\mathcal{H}_\kappa = \hbar D_\kappa S_z^2 + g_{\text{NV}} \mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} , \quad (1.26)$$

où l'indice $\kappa = f$ (resp. $\kappa = e$) précise qu'il s'agit du niveau fondamental (resp. excité). D_κ est le paramètre de clivage axial en champ nul, qui dépend du triplet considéré, tandis que le facteur de Landé g_{NV} est identique dans les deux niveaux [58]. On prendra

$D_f = 2.87$ GHz et $D_e = 1.42$ GHz [90, 91]. Le terme d'asymétrie E est négligé ici car il n'a d'effet que pour des champs très faibles, typiquement $B < 1$ mT (cf. § 1.3.2).

Pour un champ \mathbf{B} donné, on peut exprimer les états propres $\{|i\rangle\}$ comme des combinaisons linéaires des états de base $\{|i^0\rangle\}$, soit

$$|i\rangle = \sum_{j=1}^7 \alpha_{ij}(\mathbf{B}) |j^0\rangle, \quad (1.27)$$

où les coefficients $\alpha_{ij}(\mathbf{B})$ sont calculés en utilisant les expressions de \mathcal{H}_f et \mathcal{H}_e , et en posant $|7\rangle = |7^0\rangle$. Il est commode de définir la matrice unitaire $A(\mathbf{B}) = \{\alpha_{ij}(\mathbf{B})\}$, qui prend la forme générale

$$A(\mathbf{B}) = \begin{pmatrix} \alpha_{11} & \alpha_{12} & \alpha_{13} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{21} & \alpha_{22} & \alpha_{23} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \alpha_{31} & \alpha_{32} & \alpha_{33} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{44} & \alpha_{45} & \alpha_{46} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{54} & \alpha_{55} & \alpha_{56} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \alpha_{64} & \alpha_{65} & \alpha_{66} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

et transforme les “anciens” états propres en les “nouveaux” selon

$$\begin{pmatrix} |1\rangle \\ \vdots \\ |7\rangle \end{pmatrix} = A(\mathbf{B}) \begin{pmatrix} |1^0\rangle \\ \vdots \\ |7^0\rangle \end{pmatrix}. \quad (1.29)$$

Bien qu'il soit possible d'obtenir les expressions analytiques des coefficients $\alpha_{ij}(\mathbf{B})$, celles-ci sont en général compliquées et nous nous contenterons de les évaluer numériquement le moment voulu.

Pour exprimer les nouveaux taux de transitions $\{k_{ij}(\mathbf{B})\}$ en fonction des taux en champ nul $\{k_{ij}^0\}$, on utilise la règle d'or de Fermi, qui permet d'écrire

$$\begin{aligned} k_{ij}(\mathbf{B}) &= \Gamma_0 |\langle j|W|i\rangle|^2 \\ &= \Gamma_0 \left| \sum_{p=1}^7 \sum_{q=1}^7 \alpha_{ip} \alpha_{jq}^* \langle q^0|W|p^0\rangle \right|^2, \end{aligned} \quad (1.30)$$

où Γ_0 est un facteur de normalisation qui inclut la densité d'états finale, et W est le Hamiltonien perturbatif responsable de la transition. Dans le cas des transitions radiatives, il s'agit de l'interaction dipolaire électrique couplée à l'interaction électron-phonon [55]. Dans le cas des transitions non radiatives entre l'état singulet et les niveaux triplets fondamental et excité, la nature de l'interaction reste largement inconnue [23]. Par simplicité, nous négligerons les termes croisés dans le développement du carré dans l'équation (1.30). Cela revient à faire l'hypothèse qu'une superposition cohérente d'états perd sa cohérence lors d'une transition et devient un mélange purement statistique². Il ne reste alors que les termes directs dans l'équation (1.30), soit

$$k_{ij}(\mathbf{B}) = \Gamma_0 \sum_{p=1}^7 \sum_{q=1}^7 |\alpha_{ip}|^2 |\alpha_{jq}|^2 |\langle q^0|W|p^0\rangle|^2. \quad (1.31)$$

2. Notons qu'il a été observé récemment que la cohérence d'une superposition d'états de spin est en réalité préservée pendant quelques cycles optiques [92]. Nous avons vérifié que la prise en compte de cet effet ne change pas significativement les conclusions de notre modèle, ni qualitativement ni quantitativement.

Comme la densité d'états finale ne dépend pas de \mathbf{B} , les taux de transition en champ nul sont donnés par $k_{pq}^0 = \Gamma_0 |\langle q^0 | W | p^0 \rangle|^2$, ce qui donne finalement la relation entre anciens et nouveaux taux

$$k_{ij}(\mathbf{B}) = \sum_{p=1}^7 \sum_{q=1}^7 |\alpha_{ip}|^2 |\alpha_{jq}|^2 k_{pq}^0 . \quad (1.32)$$

Les taux de transitions $\{k_{ij}(\mathbf{B})\}$ permettent alors de décrire l'évolution temporelle des populations $\{n_i\}$ connaissant l'évolution temporelle du taux de pompage optique décrite par la fonction $\beta(t)$. On utilise pour cela les équations de taux classiques

$$\frac{dn_i}{dt} = \sum_{j=1}^7 (k_{ji}n_j - k_{ij}n_i) , \quad (1.33)$$

avec la contrainte de normalisation pour un système fermé, $\sum_{i=1}^7 n_i = 1$.

Traces de fluorescence sous excitation impulsionnelle

Pour accéder expérimentalement à la dynamique du centre NV et aux taux de relaxations, il est nécessaire d'utiliser une excitation laser impulsionnelle. On considère donc des impulsions de durée δt , répétées avec une période T . La durée de vie de l'état excité $|i\rangle$ ($i = 4, 5, 6$) est définie par

$$\tau_i = \frac{1}{\sum_{j=1}^7 k_{ij}} . \quad (1.34)$$

On suppose que $\delta t \ll \tau_i$, de sorte que l'excitation peut être considérée comme instantanée au regard de la dynamique de relaxation du centre NV. Sachant que les temps $\{\tau_i\}$ sont de l'ordre de 10 ns, cette condition impose que $\delta t < 1$ ns. La fonction de pompage optique s'écrit alors

$$\beta(t) = \begin{cases} \beta_m & \text{pour } -\delta t < t < 0 \\ 0 & \text{pour } 0 < t < T - \delta t \end{cases} , \quad (1.35)$$

où β_m est le taux de pompage instantané durant l'impulsion laser. Après l'excitation ($t = 0$), les populations des états excités ($i = 4, 5, 6$) décroissent exponentiellement comme $n_i(t) = n_i(0)e^{-t/\tau_i}$, une fois moyennées sur de nombreux cycles d'excitation-relaxation. Les populations initiales $\{n_i(0)\}$ sont obtenues en résolvant les équations de taux (1.33) sur les deux intervalles $[-\delta t, 0]$ et $[0, T - \delta t]$, et en reliant les solutions à l'aide de la relation de continuité en $t = 0$ et de périodicité $n_i(-\delta t) = n_i(T - \delta t)$.

Le taux de photons émis (par unité de temps) depuis l'état excité $|i\rangle$ ($i = 4, 5, 6$) correspond à la portion radiative de la relaxation totale et peut s'écrire $\mathcal{R}_i(t, \mathbf{B}) = \sum_{j=1}^3 k_{ij}(\mathbf{B})n_i(t)$. Le signal de fluorescence dépendant du temps $\mathcal{R}(t, \mathbf{B})$, tel que mesuré expérimentalement (nombre de photons détectés par unité de temps), est obtenu en sommant sur les trois états excités, soit

$$\mathcal{R}(t, \mathbf{B}) = \eta \sum_{i=4}^6 \sum_{j=1}^3 k_{ij}(\mathbf{B})n_i(0)e^{-t/\tau_i} , \quad (1.36)$$

où η est l'efficacité de collection du microscope (typiquement $\eta \sim 10^{-3}$).

Ainsi, le signal détecté $\mathcal{R}(t, \mathbf{B})$ présente en général une décroissance tri-exponentielle, l'amplitude et le temps caractéristique de chaque composante étant fonctions du champ magnétique \mathbf{B} , des taux de transition en champ nul $\{k_r^0, k_{47}^0, k_{57}^0, k_{71}^0, k_{72}^0\}$ et du paramètre de pompage β_m .

Spectres ESR Lors de l'acquisition d'un spectre ESR, la dynamique de relaxation est ignorée et l'ensemble du signal de fluorescence est intégré. Dans ce cas, on définit le taux moyen de fluorescence comme

$$\begin{aligned}\bar{\mathcal{R}}(\mathbf{B}) &= \frac{1}{T} \int_0^T \mathcal{R}(t, \mathbf{B}) dt \\ &= \eta \sum_{i=4}^6 \sum_{j=1}^3 k_{ij}(\mathbf{B}) \bar{n}_i ,\end{aligned}\tag{1.37}$$

où $\{\bar{n}_i\}$ sont les probabilités moyennes d'occupation.

À partir de cette expression, il est possible de prédire le contraste maximum \mathcal{C} qu'on peut attendre d'un spectre ESR détecté optiquement. Pour cela, il faut ajouter au modèle de la figure 1.10b des taux de transition $k_{12} = k_{21}$ (resp. $k_{13} = k_{31}$) pour prendre en compte l'effet du champ rf continu en résonance avec les transitions de spin $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ (resp. $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$) dans le niveau fondamental. Les valeurs de ces taux de transition sont reliés à l'intensité de l'onde rf. Par exemple, le contraste relatif de la résonance $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ est donné par

$$\mathcal{C}(\mathbf{B}) = \frac{\bar{\mathcal{R}}(k_{12} = 0) - \bar{\mathcal{R}}(k_{12})}{\bar{\mathcal{R}}(k_{12} = 0)} ,\tag{1.38}$$

où $\bar{\mathcal{R}}(k_{12} = 0)$ (resp. $\bar{\mathcal{R}}(k_{12})$) est le taux de fluorescence sans le champ rf (resp. avec le champ rf résonant).

1.4.2 Résultats expérimentaux

Dispositif expérimental

Pour étudier la photodynamique du centre NV en fonction du champ magnétique, nous avons réalisé des mesures de fluorescence résolues en temps. Le schéma de l'expérience est donné dans la figure 1.11a. Le microscope à fluorescence utilise un laser qui émet des impulsions de durée $\delta t \approx 60$ ps à une longueur d'onde de 532 nm, avec un taux de répétition $1/T = 10$ MHz et une puissance crête de 5 mW (PicoQuant LDH-P-FA-530B). Le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon avec un objectif de microscope à grande ouverture numérique. Le signal de fluorescence est collecté par le même objectif, et séparé du faisceau d'excitation par un miroir dichroïque. Le signal est ensuite filtré spatialement par un arrangement confocal (diaphragme de diamètre 50 μm), filtré spectralement pour ne garder que la gamme de longueur d'onde du centre NV (Semrock 697/75 BP), puis introduit dans un système de détection de type Hanbury Brown et Twiss, qui comprend une lame séparatrice suivie de deux photodiodes à avalanche. Ces deux photodiodes (Perkin-Elmer SPCM-AQR-14) fonctionnent dans le régime de comptage de photons et sont connectées à un module de comptage résolu en temps (PicoQuant PicoHarp 300).

Pour obtenir une image de fluorescence de l'échantillon, celui-ci est balayé avec une platine piézoélectrique (Mad City Labs Nano-PDQ Series). Nous allons étudier dans cette

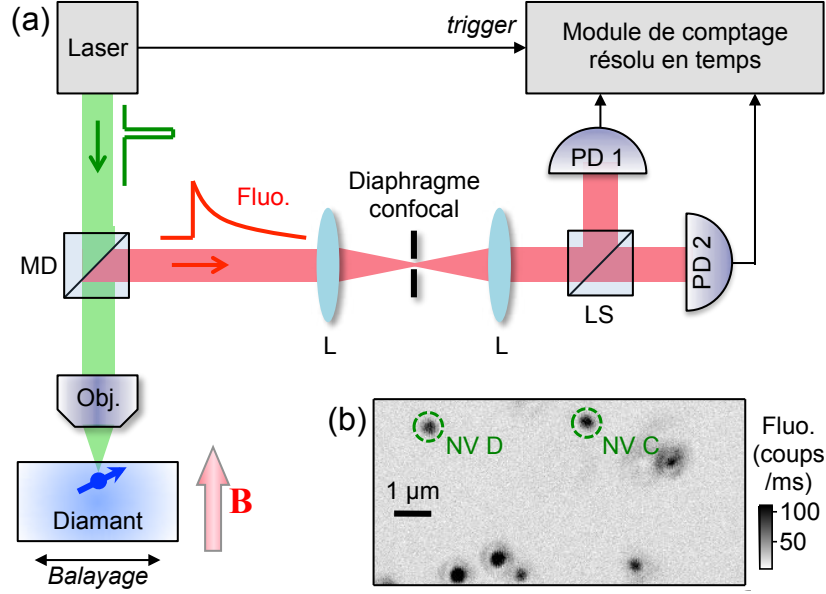


FIGURE 1.11 – (a) Schéma de l'expérience (cf. description dans le texte). MD : miroir dichroïque; L : lentille de focale 10 cm; LS : lame séparatrice; PD : photodiode à avalanche. (b) Image de fluorescence de l'échantillon de diamant massif étudié. Chaque spot noir correspond à un centre NV individuel. Les cercles verts indiquent deux des centres NV étudiés.

section des centres NV natifs situés dans un diamant massif synthétisé par la méthode CVD et fourni par la société Element Six. Une image confocale d'une portion de l'échantillon est montrée dans la figure 1.11b, et laisse apparaître des spots lumineux isolés correspondant à l'émission de centres NV.

Pour étudier un centre NV, le faisceau laser est focalisé sur un spot en particulier. Afin de vérifier qu'il s'agit bien du signal provenant d'un centre NV unique, on utilise le montage Hanbury Brown et Twiss (cf. figure 1.11a) et le module de comptage résolu en temps pour enregistrer l'histogramme des délais τ entre deux détections successives sur un détecteur puis l'autre (figure 1.12a). Cela revient, après une normalisation adéquate [93], à mesurer la fonction d'autocorrélation du signal de fluorescence $g^{(2)}(\tau)$, qui correspond à la probabilité de détecter un photon à l'instant $t + \tau$ sachant qu'un photon a été détecté à l'instant t . L'effet d'anticorrélation au délai nul, $g^{(2)}(0) \approx 0$, indique qu'il est très peu probable que deux photons soit émis en même temps par la source de fluorescence. Ceci prouve qu'on a affaire à un émetteur de photons uniques et donc à un centre NV unique. La figure 1.12a montre une fonction $g^{(2)}(\tau)$ typique enregistrée pour un centre NV unique excité par un laser continu.

Grâce au laser impulsionnel, il est possible d'enregistrer directement la trace de relaxation du centre NV suivant une excitation optique. Pour cela, on construit l'histogramme des délais τ entre l'impulsion laser et le photon détecté ultérieurement sur l'une des deux photodiodes (figure 1.12b). Le signal est accumulé sur un grand nombre de répétitions du cycle d'excitation-relaxation, typiquement $\sim 10^8$ répétitions, révélant une courbe décroissante $\mathcal{R}(\tau)$ qui renseigne sur la dynamique de relaxation du niveau excité du centre NV.

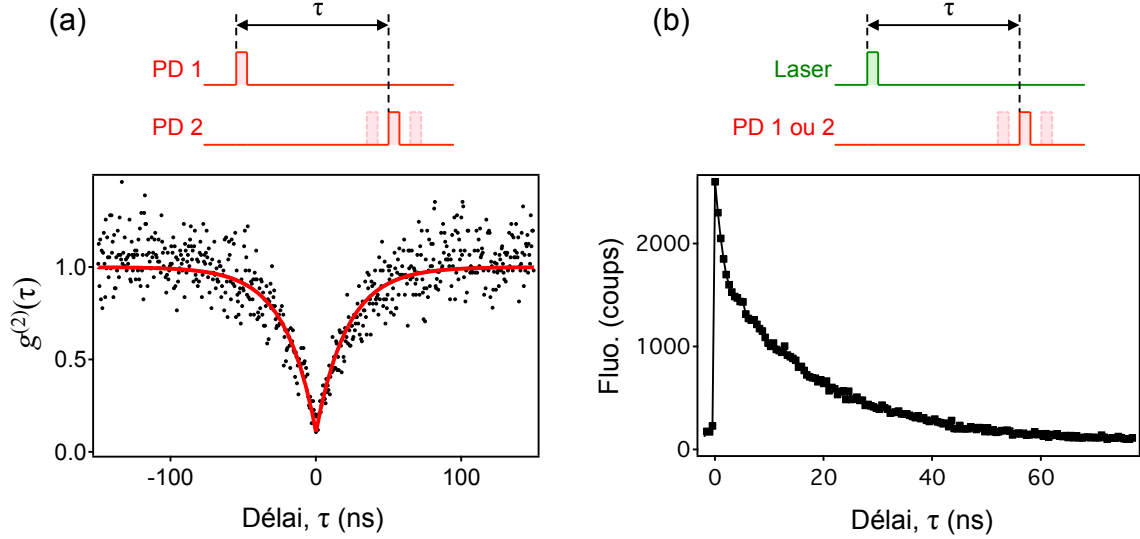


FIGURE 1.12 – (a) Fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ du signal de fluorescence d'un centre NV unique sous excitation laser continue, obtenue à partir de l'histogramme des délais τ entre deux photons détectés successivement sur une photodiode puis l'autre. La ligne rouge est un ajustement par la fonction $g^{(2)}(\tau) = 1 - Ae^{-\lambda|\tau|}$. L'anticorrélation au délai nul ($g^{(2)}(0) \approx 0$) indique que les photons sont émis un par un. (b) Trace de relaxation d'un centre NV unique, obtenue en acquérant l'histogramme des délais τ entre une impulsion laser brève et le photon de fluorescence détecté sur l'une des deux photodiodes.

Traces de relaxation en fonction du champ magnétique

Nous avons étudié la photodynamique de plusieurs centre NV d'un même diamant en fonction du champ magnétique, à température ambiante. Le champ \mathbf{B} est appliqué avec un électro-aimant, comme illustré dans la figure 1.8a. Pour chaque centre NV étudié, l'amplitude et l'orientation de \mathbf{B} sont d'abord calibrés par spectroscopie ESR, comme expliqué dans la section 1.3.3 (cf. figure 1.8c). Des traces de relaxation $\mathcal{R}(t, B)$ sont ensuite enregistrées en fonction de l'amplitude B du champ magnétique, l'angle θ entre \mathbf{B} et l'axe du centre NV restant fixé.

La figure 1.13a montre les traces de relaxation mesurées pour le centre NV désigné comme 'NV E', lorsque B varie entre 0 et 72 mT avec $\theta = 55^\circ$. Nous pouvons maintenant comparer ces données au modèle développé précédemment. Pour cela, les courbes théoriques données par l'équation (1.36) sont ajustées de manière globale aux données. Autrement dit, la matrice $\mathcal{R}(t, B)$ est ajusté à l'ensemble des données, en laissant libres les taux de transition $\{k_{41}^0, k_{47}^0, k_{57}^0, k_{71}^0, k_{72}^0\}$, le paramètre de pompage optique β_m et l'efficacité de collection η . Il est important de souligner que bien qu'en principe chaque trace de relaxation peut être ajustée individuellement par l'équation (1.36), c'est-à-dire par une décroissance tri-exponentielle, seul l'ajustement global, qui prend en compte les corrélations entre les courbes à différentes valeurs de B , permet d'extraire les paramètres photophysiques de manière fiable. Cela est lié au fait que les temps caractéristiques des trois exponentielles sont très proches les uns des autres, si bien qu'un ajustement individuel n'aurait qu'une pertinence limitée.

Le résultat de l'ajustement global pour NV E est montré dans la figure 1.13b, et reproduit bien les données expérimentales. Les taux de transition obtenus pour NV E,

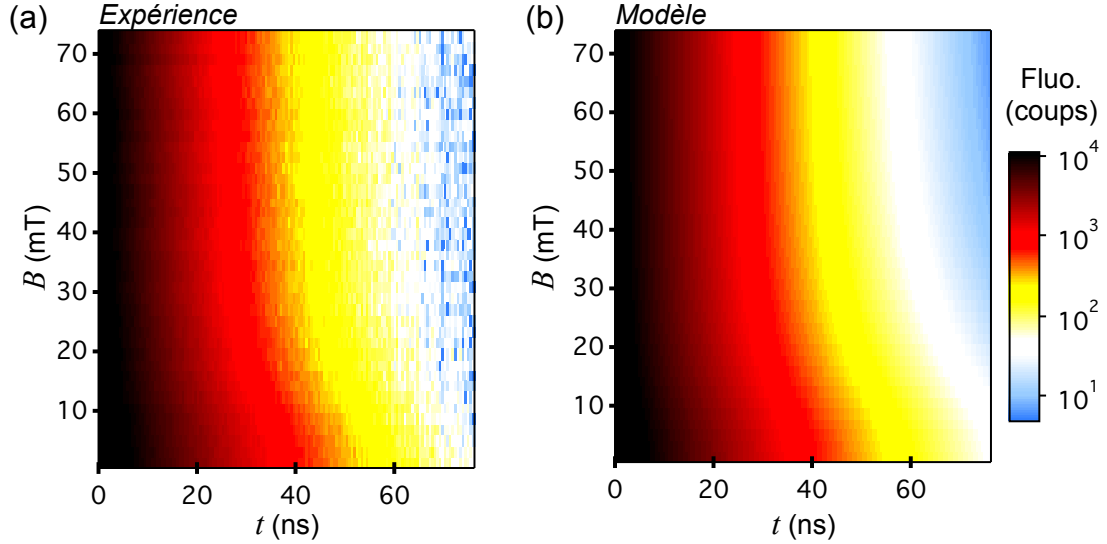


FIGURE 1.13 – (a) Traces de fluorescence $\mathcal{R}(t, B)$ après une impulsion laser, mesurées pour NV E en fonction de l’amplitude B , avec $\theta = 55^\circ$ fixé. Pour chaque valeur de B , le signal est accumulé pendant 15 s. (b) Résultat du modèle décrit dans le texte, après ajustement aux données de (a). Les paramètres d’ajustement sont indiqués dans la table 1.2.

ainsi que pour trois autres centres NV, sont indiqués dans la table 1.2. Ceux-ci sont en accord raisonnable avec les valeurs obtenues par Robledo et collègues par une méthode différente [62]. Cela suggère que l’effet du champ magnétique sur la photodynamique du centre NV est bien décrit par notre modèle.

Comme attendu, le couplage du niveau excité vers l’état métastable dépend fortement de l’état de spin, puisque $k_{57}^0 \gg k_{47}^0$ (cf. table 1.2). Cette propriété est à l’origine de la polarisation du spin dans l’état $|m_s = 0\rangle$ sous pompage optique, ainsi que de la dépendance

		NV C	NV D	NV E	NV F	Réf. [62]
θ	($^\circ$)	35 ± 1	74 ± 1	55 ± 1	36 ± 1	
k_r^0	(μs^{-1})	67.7 ± 3.4	63.2 ± 4.6	63.7 ± 4.5	69.1 ± 1.6	65.0 ± 0.5
k_{47}^0	(μs^{-1})	6.4 ± 2.3	10.8 ± 4.1	9.3 ± 3.0	5.2 ± 0.8	11.0 ± 0.3
$k_{57}^0 = k_{67}^0$	(μs^{-1})	50.7 ± 4.4	60.7 ± 6.6	53.0 ± 5.9	48.6 ± 1.9	80.0 ± 2.3
k_{71}^0	(μs^{-1})	0.7 ± 0.5	0.8 ± 0.6	0.9 ± 0.8	1.5 ± 0.5	3.0 ± 1.0
$k_{72}^0 = k_{73}^0$	(μs^{-1})	0.6 ± 0.3	0.4 ± 0.2	0.5 ± 0.2	1.4 ± 0.2	1.3 ± 0.6
τ_4^0	(ns)	13.5 ± 1.1	13.5 ± 1.6	13.7 ± 1.4	13.5 ± 0.5	13.3 ± 0.1
$\tau_5^0 = \tau_6^0$	(ns)	8.4 ± 0.6	8.1 ± 0.8	8.6 ± 0.8	8.5 ± 0.3	6.9 ± 0.2

TABLE 1.2 – Taux de transition du centre NV en champ magnétique nul tirés de l’ajustement global de la matrice $\mathcal{R}(t, B)$. Sont indiqués les résultats (moyenne \pm écart-type) obtenus pour quatre centres NV orientés avec différents angles θ par rapport à la direction de \mathbf{B} . Les deux dernières lignes mentionnent les durées de vie des états excités déduites des taux de transition. La dernière colonne indique les résultats obtenus par Robledo et collègues dans la référence [62] avec une méthode différente.

en spin du taux de fluorescence instantané du centre NV. De plus, nos mesures semblent confirmer que l'état métastable relaxe quasiment aussi souvent vers les états $|m_s = \pm 1\rangle$ que vers $|m_s = 0\rangle$, c'est-à-dire que $k_{71}^0 \sim k_{72}^0$, contrairement à l'hypothèse initiale de Manson et collègues d'un couplage exclusivement vers $|m_s = 0\rangle$, soit $k_{72}^0 = 0$ [61]. Néanmoins, l'origine microscopique de ces couplages reste mal comprise [94, 95].

Pour discuter de l'effet du champ magnétique sur la photodynamique du centre NV, il est commode d'examiner quelques traces de relaxation enregistrées à différentes valeurs de B . La figure 1.14a montre les traces obtenues pour NV E à $B = 0, 15$ et 72 mT, extraites de la figure 1.13. On observe que le champ magnétique accélère la relaxation du centre NV – puisque la pente est plus forte à 72 mT qu'à 0 mT – tout en diminuant le signal total émis, qui correspond à l'aire sous la courbe. Ces deux observations sont cohérentes avec une augmentation du taux de relaxation non radiative lorsque B augmente, à taux de relaxation radiative constant.

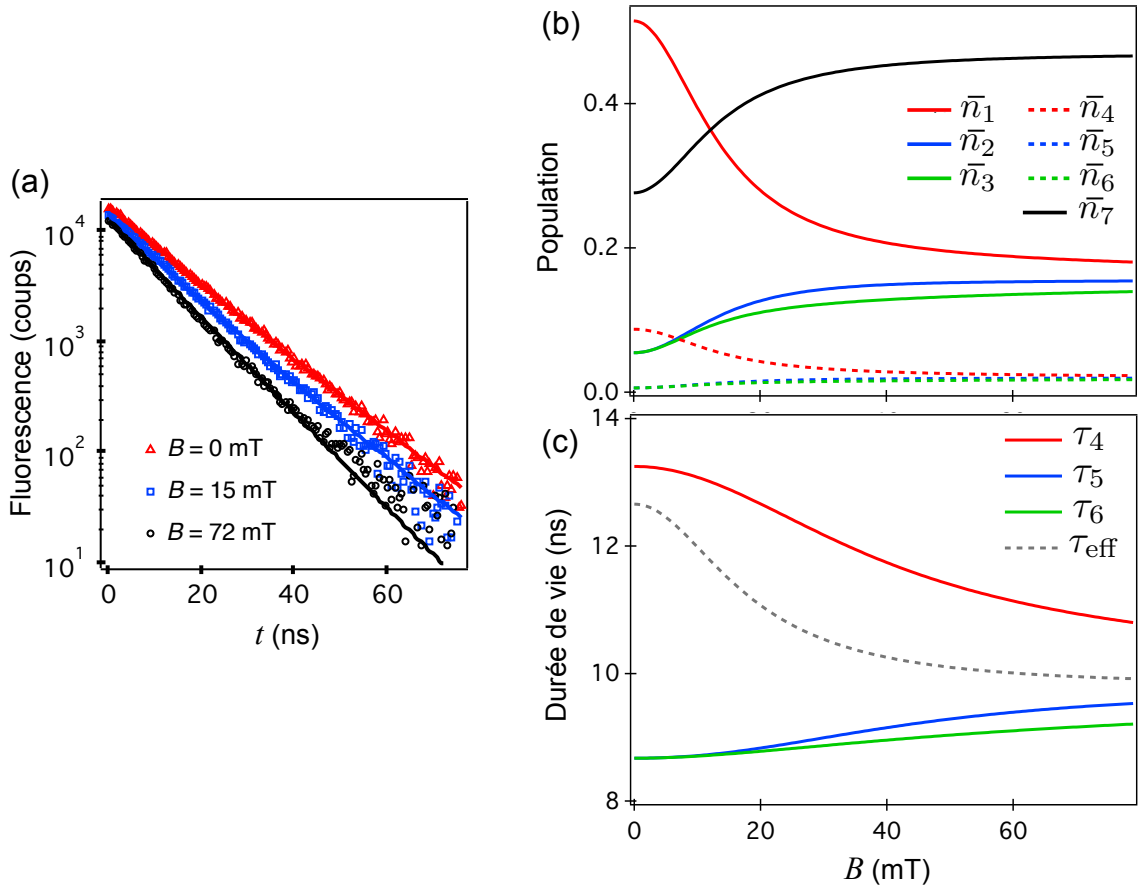


FIGURE 1.14 – (a) Traces de fluorescence enregistrées pour NV E à différentes valeurs de B . Les lignes continues sont extraites de l'ajustement global montré dans la figure 1.13b. (b) Populations moyennes dans les sept états du centre NV sous pompage optique en fonction de B , calculées avec les paramètres de NV E pour un angle fixé $\theta = 55^\circ$. (c) Durées de vie des trois états du niveau excité en fonction de B , calculées avec les mêmes paramètres qu'en (b). La durée de vie effective du niveau excité τ_{eff} est également montrée en pointillés.

Plus précisément, les courbes de relaxation de la figure 1.14a correspondent, d’après l’équation (1.36), aux sommes des décroissances des trois états $|4\rangle$, $|5\rangle$ et $|6\rangle$ qui contribuent à la fluorescence, pondérées par leurs populations respectives. Par exemple, les courbes d’ajustement de la figure 1.14a indiquent, à $B = 0$, que les amplitudes relatives des trois décroissances exponentielles sont 0.72, 0.14 et 0.14 avec des temps caractéristiques $\tau_4 = 13.7$ ns et $\tau_5 = \tau_6 = 8.6$ ns, respectivement. Au plus fort champ ($B = 72$ mT), ces amplitudes deviennent 0.34, 0.34 et 0.32 avec des temps caractéristiques $\tau_4 = 11.0$ ns, $\tau_5 = 9.4$ ns et $\tau_6 = 9.1$ ns. Ces valeurs illustrent les effets du champ transverse, qui ré-équilibre les populations des différents états ainsi que leurs durées de vie.

Plus généralement, le modèle permet, avec les paramètres issus de l’ajustement global de la matrice $\mathcal{R}(t, B)$, de calculer l’évolution précise des populations et durées de vie des états du centre NV en fonction de B . Par exemple, les figures 1.14b et 1.14c montrent les populations moyennes \bar{n}_i des sept états, ainsi que les durées de vie τ_i des états excités, en fonction de l’amplitude B dans le cas de NV E ($\theta = 55^\circ$). À $B = 0$, l’état $|1\rangle$, de projection de spin $m_s = 0$, est le plus peuplé, ce qui reproduit l’effet de polarisation de spin sous pompage optique. Lorsque B augmente, les populations des trois états du niveau fondamental, $|1\rangle$, $|2\rangle$ et $|3\rangle$, s’équilibrent à cause du mélange des taux de transition lié au mélange des états de spin dans les niveaux fondamental et excité. D’autre part, la population de l’état métastable $|7\rangle$ augmente avec B pour la même raison, traduisant le fait que le centre NV relaxe plus souvent, en moyenne, via le chemin non radiatif. C’est ce qui explique la réduction de fluorescence total observée dans la figure 1.14a.

Conséquences du champ magnétique sur les propriétés optiques globales

Après avoir analysé l’effet du champ magnétique sur le détail des courbes de relaxation du centre NV, nous nous intéressons maintenant aux propriétés “globales” qui caractérisent sa photodynamique. Plus précisément, nous allons considérer les trois quantités mesurables suivantes : (i) le taux moyen de fluorescence $\bar{\mathcal{R}}$, (ii) la durée de vie effective τ_{eff} du niveau excité (définie plus bas), et enfin (iii) le contraste maximum \mathcal{C} atteignable dans un spectre ESR.

Intensité de fluorescence La quantité la plus simple à mesurer est le taux moyen de fluorescence $\bar{\mathcal{R}}$, donné par l’équation (1.37). Expérimentalement, il suffit d’intégrer le signal de fluorescence détecté par les photodiodes au cours du temps. La figure 1.15a montre l’évolution de $\bar{\mathcal{R}}$ avec l’amplitude B , mesurée pour trois centres NV avec des angles θ différents et supérieurs à 30° . Dans les trois cas, et indépendamment de la valeur exacte de θ , le signal diminue progressivement lorsque B augmente, avec une réduction supérieure à 30% pour $B > 20$ mT et une saturation pour $B \gtrsim 50$ mT. Cette décroissance monotone est donc une caractéristique de la photodynamique du centre NV dans un champ magnétique non aligné avec l’axe NV, qui dépend peu de l’orientation exacte de ce champ.

Durée de vie effective Pour quantifier simplement la réduction de la durée de vie du niveau excité, nous définissons une durée de vie effective τ_{eff} , qui est le résultat d’un ajustement de la trace de décroissance $\mathcal{R}(t)$ par une simple fonction exponentielle, soit

$$\mathcal{R}(t) \approx \mathcal{R}(0)e^{-t/\tau_{\text{eff}}} . \quad (1.39)$$

Le temps τ_{eff} est donc le temps caractéristique qui ajuste au mieux la décroissance tri-exponentielle réelle. Cette approche est motivée par le fait que les trois temps caractéristiques τ_4 , τ_5 et τ_6 sont peu éloignés les uns des autres, rendant un ajustement par

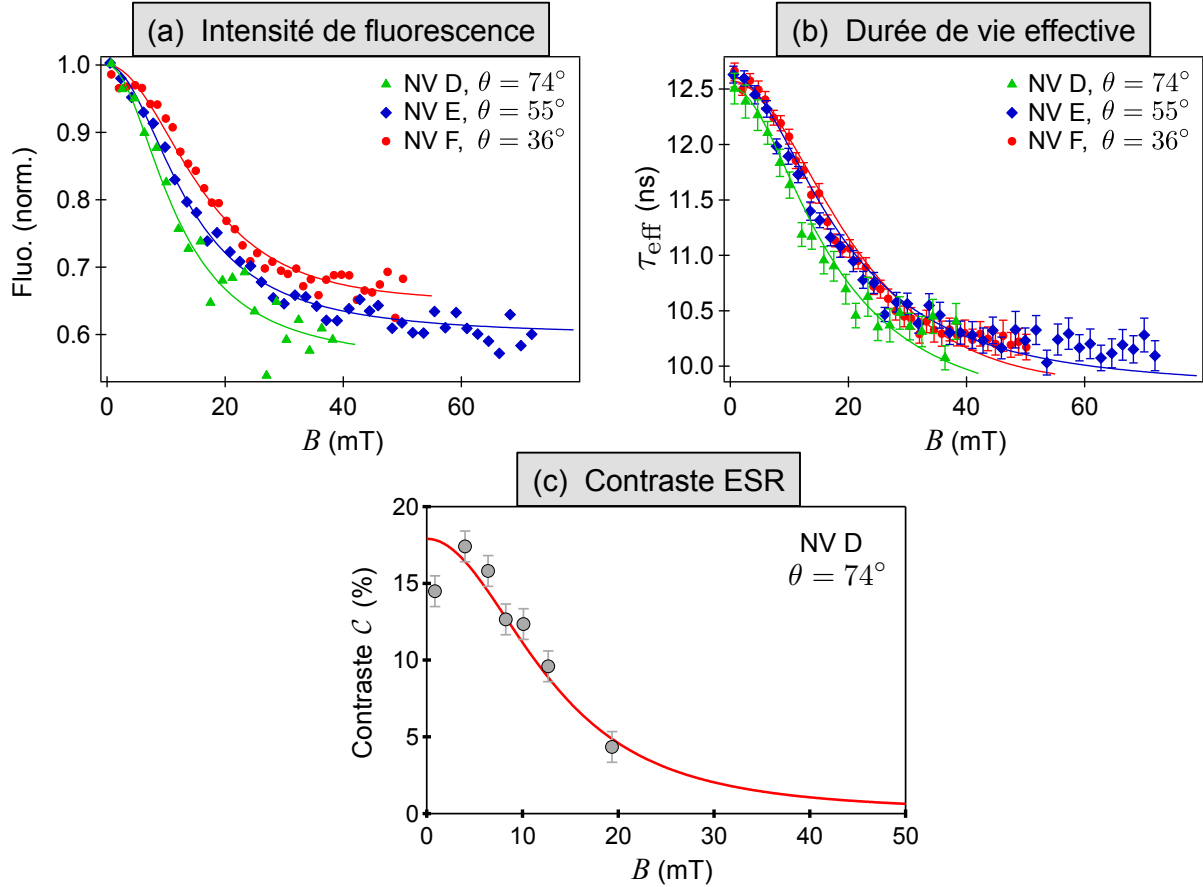


FIGURE 1.15 – (a) Taux moyen de fluorescence $\bar{\mathcal{R}}$ mesuré en fonction de l’amplitude B pour trois centres NV différents à θ fixé. (b) Durée de vie effective τ_{eff} mesurée en fonction de B pour les trois mêmes centres NV qu’en (a). Les barres d’erreur indiquent l’intervalle de confiance à 95% issues de l’ajustement avec l’équation (1.39). Les lignes continues sont le résultat du modèle en utilisant les paramètres déterminés dans la table 1.2, sans paramètre d’ajustement. (c) Contraste relatif \mathcal{C} de la résonance f_- en fonction de B , obtenu à partir des spectres de la figure 1.8b. La ligne continue est un ajustement avec l’équation (1.38). Les paramètres ajustables sont le paramètre de pompage optique β_m et le taux de transition k_{12} , qui est relié à l’intensité du champ rf. Les autres paramètres du modèle sont pris de la table 1.2.

une fonction tri-exponentielle peu fiable. À l’inverse, un ajustement par une simple exponentielle est un moyen robuste de caractériser la dynamique de relaxation du centre NV de façon globale. Cette procédure est appliquée à la fois aux données expérimentales et aux courbes de relaxation calculées, permettant ainsi leur comparaison. La figure 1.15b montre les mesures de τ_{eff} en fonction de B pour les trois mêmes centres NV que dans la figure 1.15a, révélant une décroissance monotone similaire à celle de $\bar{\mathcal{R}}$. La principale différence entre les figures 1.15a et 1.15b est l’amplitude de l’effet. Le temps τ_{eff} chute de $\approx 20\%$ au plus lorsque B passe de 0 à 50 mT, tandis que la fluorescence moyenne chute de $\approx 40\%$.

Ces deux effets purement magnéto-optiques, à savoir la réduction de fluorescence et la réduction du temps de vie effectif en présence d’un champ magnétique transverse, suggèrent une nouvelle méthode de magnéto-métrie basée sur le centre NV. Ce point sera

discuté plus en détail dans la section 1.4.3.

Contraste ESR Enfin, une autre propriété du centre NV qui nous intéresse particulièrement dans le contexte de la magnétométrie est le contraste relatif \mathcal{C} des raies ESR, qui influe directement sur la sensibilité au champ magnétique, laquelle varie en $\eta \propto 1/\mathcal{C}$ (cf. § 1.3.5). Dans les mêmes conditions que pour obtenir les traces de relaxation $\mathcal{R}(t, B)$, nous avons enregistré des spectres ESR pour différentes valeurs de l’amplitude B , à angle θ fixé. Des spectres obtenus pour NV D ($\theta = 74^\circ$), avec B variant de 0 à 20 mT, ont été montrés précédemment (cf. figure 1.8b). La figure 1.15c indique le contraste \mathcal{C} de la résonance en fonction de B .

À l’instar de $\bar{\mathcal{R}}$ et τ_{eff} , on observe que \mathcal{C} diminue progressivement lorsque B augmente. Le modèle, via l’équation (1.38), reproduit bien les données entre 0 et 20 mT, et prédit que le contraste diminue jusqu’à une valeur de saturation, qui vaut ici $\mathcal{C} \approx 1\%$ pour $B \gtrsim 50$ mT. Ceci illustre directement une limitation de la magnétométrie par spectroscopie ESR, qui est de moins en moins sensible à mesure que le champ B augmente, pour peu qu’il ne soit pas aligné avec l’axe du centre NV. Comme pour $\bar{\mathcal{R}}$ et τ_{eff} , la réduction du contraste s’explique par le fait que, en présence d’un fort champ transverse B_\perp , les états propres du niveau fondamental du centre NV ne sont plus des états de projection de spin m_s bien définie. Par conséquent, la différence de fluorescence entre l’état brillant $|m_s = 0\rangle$ et les états sombres $|m_s = \pm 1\rangle$ s’atténue puisque les nouveaux états propres sont des mélanges de ces états de base, qu’on peut qualifier schématiquement d’états “gris”.

En résumé, les mesures, corroborées par le modèle, montrent que la présence d’un champ magnétique non aligné avec l’axe du centre NV induit :

1. une réduction du taux moyen de fluorescence ;
2. une réduction de la durée de vie effective du niveau excité ;
3. une réduction du contraste des spectres ESR.

Nous allons maintenant discuter de la possibilité de mettre à profit les deux premiers points pour mesurer le champ magnétique dans le régime des forts champs transverses.

1.4.3 Discussion

Prédictions des propriétés optiques globales pour tout champ magnétique

Les expériences précédentes suggèrent que les propriétés magnéto-optiques du centre NV peuvent être directement exploitées pour détecter la présence d’un fort champ magnétique. Afin d’évaluer cette possibilité de manière quantitative, nous avons calculé en fonction du champ magnétique \mathbf{B} le taux moyen de fluorescence $\bar{\mathcal{R}}$ ainsi que la durée de vie effective τ_{eff} du niveau excité, deux quantités facilement accessibles expérimentalement. Comme seule l’amplitude B et l’inclinaison θ du champ \mathbf{B} relativement à l’axe du centre NV affectent la physique du centre NV, nous avons calculé $\bar{\mathcal{R}}$ et τ_{eff} en fonction de B_{NV} et B_\perp , composantes parallèle et transverse du champ par rapport à l’axe NV. Les résultats théoriques sont montrés dans la figure 1.16, en utilisant les paramètres de NV E (cf. table 1.2) et en variant B_{NV} et B_\perp dans la gamme 0 – 150 mT.

En premier lieu, nous notons que quelque soit la valeur de B_{NV} dans cette gamme, la fluorescence diminue progressivement lorsque B_\perp augmente, avec une réduction supérieure à 30% pour $B_\perp > 20$ mT (figure 1.16a). C’est ce qui a été observé expérimentalement dans les mesures de la figure 1.15a.

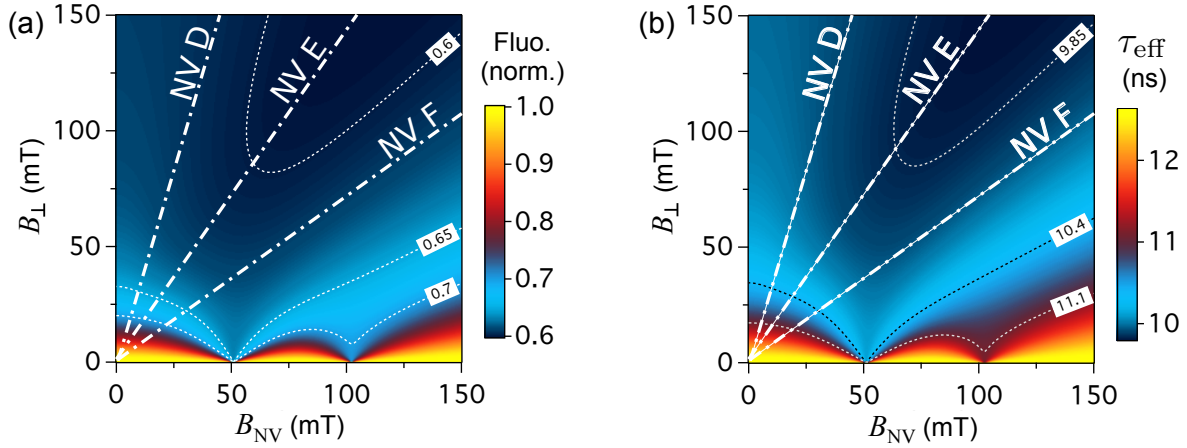


FIGURE 1.16 – (a) Taux moyen de fluorescence $\bar{\mathcal{R}}$ en fonction de B_{NV} et B_{\perp} , normalisé par la valeur en champ nul, calculé avec les paramètres de NV E. (b) Durée de vie effective τ_{eff} en fonction de B_{NV} et B_{\perp} calculée avec les paramètres de NV E. Les lignes blanches droites représentent les directions de \mathbf{B} pour trois des centres NV étudiés, tandis que les lignes pointillées fines sont des lignes d'iso-amplitude.

Par ailleurs, la figure 1.16a prédit un autre effet dans le régime des faibles champs transverses ($B_{\perp} \lesssim 10$ mT). En effet, la fluorescence chute brutalement autour de deux valeurs bien définies du champ, à savoir pour $B_{NV} \approx 51$ mT et $B_{NV} \approx 102$ mT. Ces champs correspondent à l'anti-croisement des états de spin dans le niveau excité (lorsque $B_{NV} \approx \frac{\hbar D_e}{g_{NV} \mu_B} \approx 51$ mT) et dans le niveau fondamental (lorsque $B_{NV} \approx \frac{\hbar D_f}{g_{NV} \mu_B} \approx 102$ mT), c'est-à-dire lorsque le déplacement Zeeman compense exactement le clivage axial dans le Hamiltonien (1.26). Dans ce cas la condition $B_{\perp} \ll \left| \frac{\hbar D_e}{g_{NV} \mu_B} - B_{NV} \right|$, et donc $\mathcal{H}_{\perp} \ll \mathcal{H}_{\parallel}$, n'est plus vérifiée même pour des faibles valeurs de B_{\perp} , et le terme transverse \mathcal{H}_{\perp} induit alors un mélange des états de spin et des taux de transition, causant la chute du signal de fluorescence moyen. Cet effet, qui a été observé expérimentalement [96], est bien reproduit par notre modèle.

La figure 1.16b montre un comportement très similaire pour τ_{eff} en fonction de B_{NV} et B_{\perp} , aussi bien pour la diminution monotone lorsque B_{\perp} augmente que pour les baisses localisées en $B_{NV} \approx 51$ mT et $B_{NV} \approx 102$ mT dues aux effets d'anti-croisement de niveaux. Comme mentionné plus haut, la principale différence entre les figures 1.16a et 1.16b est l'amplitude relative de l'effet, qui est deux fois fort pour $\bar{\mathcal{R}}$ que pour τ_{eff} .

Notons que le contraste ESR peut également être calculé en fonction B_{NV} et B_{\perp} , et montre la même tendance que $\bar{\mathcal{R}}$ et τ_{eff} , illustrant une nouvelle fois la corrélation entre les trois quantités.

Application à la magnétométrie

Étant donnée la dépendance complexe de $\bar{\mathcal{R}}$ (ou τ_{eff}) en fonction de B_{NV} et B_{\perp} (cf. figures 1.16a et 1.16b), il n'est pas possible en général de déduire les valeurs de B_{NV} et B_{\perp} à partir de la simple mesure de $\bar{\mathcal{R}}$ (ou de τ_{eff}), à moins que la direction de \mathbf{B} ne soit connue a priori. En ce sens, les propriétés magnéto-optiques du centre NV ne peuvent pas être utilisées pour réaliser une mesure quantitative du champ magnétique, contrairement à la spectroscopie ESR qui fournit directement la projection du champ sur l'axe NV dans

le régime des champs faibles, c’est-à-dire la composante B_{NV} .

Toutefois, la dépendance de $\bar{\mathcal{R}}$ et τ_{eff} en fonction de \mathbf{B} peut être utilisée pour extraire une information qualitative sur \mathbf{B} . D’après les figures 1.16a et 1.16b, la chute de $\bar{\mathcal{R}}$ ou τ_{eff} renseigne surtout, si on ignore les deux anti-croisements de niveaux, sur la présence d’un fort champ transverse B_{\perp} . Par exemple, une chute de fluorescence de 30%, ou une réduction de τ_{eff} de 1.5 ns, indique essentiellement que $B_{\perp} > 20$ mT.

Ainsi, nous avons maintenant une méthode purement optique – qui ne requiert pas d’excitation rf – permettant d’obtenir une information qualitative sur l’intensité du champ transverse B_{\perp} . Elle permet en particulier de détecter facilement une variation de $B_{\perp} = 0$ à $B_{\perp} > 20$ mT – sans limitation sur la valeur du champ maximal, qui peut atteindre plusieurs teslas – et vice versa. Cette méthode est donc complémentaire de la magnétométrie par spectroscopie ESR, laquelle permet de mesurer des champs dans la gamme 0 – 20 mT.

Notons que puisque la mesure de $\bar{\mathcal{R}}$ apporte autant d’information utile que τ_{eff} , il est plus avantageux en pratique de mesurer $\bar{\mathcal{R}}$ car la mesure est plus rapide pour un rapport signal-sur-bruit équivalent, typiquement quelques millisecondes pour $\bar{\mathcal{R}}$ contre plusieurs secondes pour τ_{eff} , et peut être réalisée en régime d’excitation continue, sans besoin d’un laser impulsionnel.

Le temps d’acquisition de cette méthode de magnétométrie par extinction de fluorescence est, comme pour la spectroscopie ESR, limité par le bruit poissonnien du comptage des photons. Par exemple, pour détecter, avec un rapport signal-sur-bruit de 1, un changement de B_{\perp} de 0 à 20 mT produisant une variation relative de signal $\mathcal{C} \approx 30\%$, il faut intégrer pendant une durée $\Delta t \approx \frac{1}{\mathcal{C}^2 \bar{\mathcal{R}}} \approx 0.1$ ms en supposant un taux de comptage maximal de $\mathcal{R} = 10^5 \text{ s}^{-1}$. Cette technique est donc bien adaptée pour cartographier rapidement, de manière qualitative, le champ de fuite au-dessus d’échantillons ferromagnétiques émettant un fort champ inhomogène.

En particulier, elle pourrait aider à la caractérisation des médias de stockage magnétique de l’information de nouvelle génération, qui consistent en des domaines magnétiques – des “bits” – de taille caractéristique inférieure à 100 nm. Cette idée sera démontrée expérimentalement au chapitre suivant (§ 2.4.2).

1.5 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre deux stratégies pour détecter un champ magnétique statique en utilisant le centre NV du diamant. En détectant optiquement les résonances de spin f_{\pm} du centre NV, il est possible de mesurer, via l’effet Zeeman, la projection du champ selon l’axe \mathbf{u}_{NV} , c’est-à-dire la composante $B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$, ainsi que, sous certaines conditions, la composante transverse $B_{\perp} = \|\mathbf{B} \times \mathbf{u}_{\text{NV}}\|$ (§ 1.3). À partir de la simple mesure du taux de fluorescence, il est également possible de détecter la présence d’une forte composante transverse B_{\perp} (§ 1.4).

Une caractéristique importante de ce magnétomètre est sa taille quasi-atomique. Le centre NV mesure en effet le champ magnétique dans un volume de l’ordre du (nm)³, qui correspond à l’extension de sa fonction d’onde électronique. En outre, il fonctionne à température ambiante. Ces deux propriétés font du centre NV le plus petit magnétomètre fonctionnant aux conditions ambiantes. Le centre NV est donc un candidat idéal pour la réalisation d’un microscope de champ magnétique à résolution spatiale nanométrique. Le chapitre 2 a pour objet de décrire la réalisation d’un tel microscope. Nous l’appliquerons ensuite à la cartographie du champ magnétique produit par des microstructures ferromagnétiques.

Réalisation d'un microscope de champ magnétique basé sur le centre NV du diamant

Sommaire

2.1	Introduction	49
2.2	Architecture du microscope à centre NV	50
2.2.1	Dispositif expérimental	50
2.2.2	Greffer un nanodiamant sur la pointe AFM	54
2.2.3	Caractérisation du magnétomètre greffé	55
2.3	Imagerie de microplots ferromagnétiques	57
2.3.1	Un microdisque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ comme échantillon test	57
2.3.2	Différents modes d'imagerie	58
2.3.3	Résolution spatiale	63
2.3.4	Imagerie de textures d'aimantation plus complexes	67
2.4	Imagerie magnétique dans le régime des champs forts	71
2.4.1	Effet du champ transverse sur l'imagerie par spectroscopie ESR	72
2.4.2	Imagerie d'un réseau de bits magnétiques par extinction de fluorescence	73
2.5	Conclusion	76

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous décrivons la réalisation d'un microscope de champ magnétique de résolution nanométrique utilisant le centre NV du diamant. Le schéma général d'un tel "microscope à centre NV" est montré dans la figure 2.1. Il est basé sur un microscope à force atomique (AFM) combiné à un microscope confocal à fluorescence. À l'extrémité de la pointe de l'AFM, on positionne une nanoparticule de diamant contenant un centre NV unique. L'AFM permet alors de balayer le centre NV, employé comme magnétomètre, à proximité de la surface de l'échantillon à étudier. Cet instrument devrait permettre de cartographier le champ magnétique généré par un échantillon de manière quantitative, non invasive, avec une résolution spatiale nanométrique et aux conditions ambiantes.

Ce chapitre est organisé comme suit. Dans un premier temps, nous décrirons l'architecture du microscope à centre NV que nous avons réalisé (§ 2.2) : les différents éléments qui le composent, la méthode pour greffer un nanodiamant sur la pointe AFM, et enfin

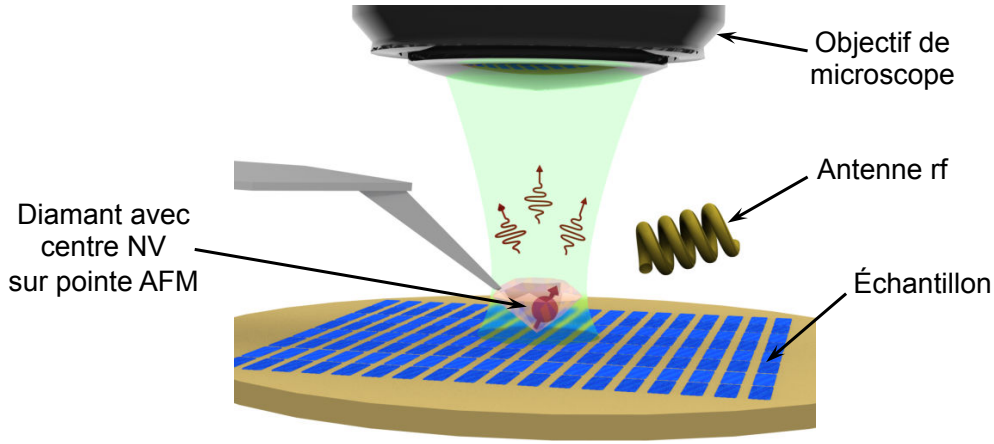


FIGURE 2.1 – Un microscope de champ magnétique à résolution nanométrique peut être réalisé en couplant un diamant contenant un centre NV à un microscope à force atomique (AFM), ce qui permet de déplacer le centre NV au-dessus d'un échantillon. Un microscope à fluorescence permet alors d'utiliser le centre NV comme magnétomètre.

la caractérisation du magnétomètre. Dans un second temps, le microscope sera utilisé pour imager le champ de fuite de structures ferromagnétiques simples (§ 2.3). Cela nous permettra de tester différentes techniques d'imagerie basées sur la méthode de magnétométrie par spectroscopie ESR, et d'évaluer les performances et le potentiel du microscope. Enfin, nous testerons la possibilité d'imager le champ magnétique en utilisant la technique d'extinction de fluorescence (§ 2.4).

2.2 Architecture du microscope à centre NV

La figure 2.2 est une photographie du microscope à centre NV tel que nous l'avons réalisé [35]. L'objet de cette section est d'en décrire les principaux éléments. Nous commencerons par présenter le dispositif de base, qui comprend un microscope à force atomique et un microscope confocal à fluorescence (§ 2.2.1). Puis nous décrirons la procédure d'accrochage d'un nanodiamant sur la pointe de l'AFM (§ 2.2.2). Enfin, nous caractériserons la sonde magnétique ainsi réalisée. Nous verrons en particulier comment mesurer l'orientation spatiale du centre NV, qui définit l'axe de projection dans les mesures de champ magnétique (§ 2.2.3).

2.2.1 Dispositif expérimental

Le microscope à force atomique

Le microscope à force atomique utilisé ici est un prototype développé par la société Attocube Systems (Munich, Allemagne) et désormais commercialisé (modèle at-toAFM/CFM). Une vue de côté de cet AFM est montrée dans la figure 2.2. La pointe AFM et l'échantillon reposent sur deux ensembles indépendants de positionneurs et scanners piézoélectriques. Les positionneurs fournissent une gamme de déplacement de $3 \times 3 \times 2.5$ (mm)³ (Attocube ANPx51 et ANPz51), tandis que les scanners offrent une gamme de balayage de $30 \times 30 \times 4.3$ (μm)³ (Attocube ANSxy50 et ANSz50).

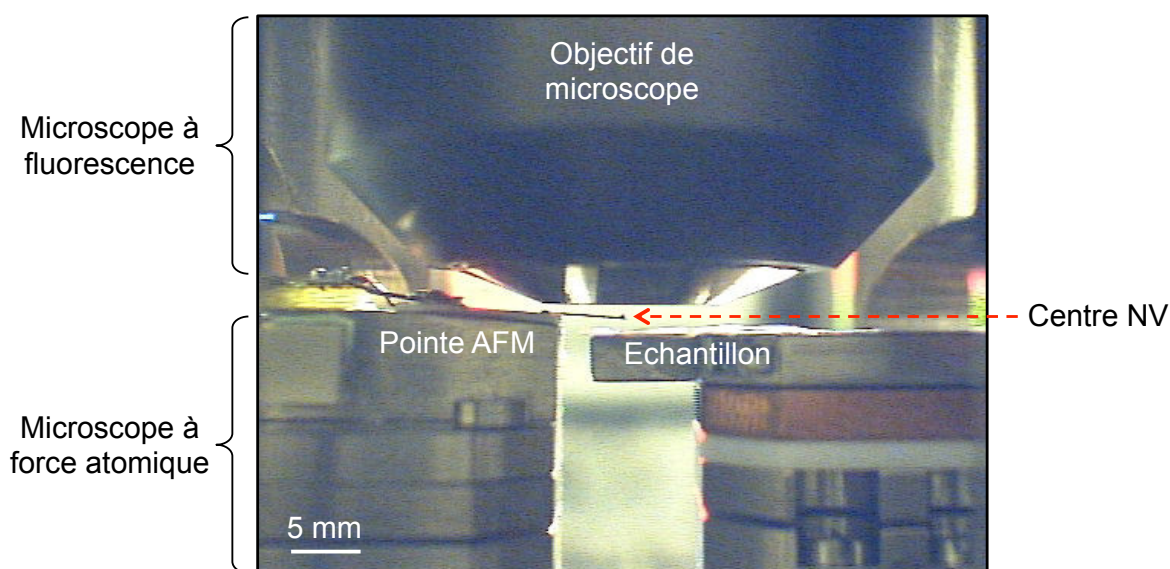


FIGURE 2.2 – Photographie du microscope à centre NV vu de côté, montrant les principaux éléments qui le composent. Un microscope à force atomique est surmonté d’un microscope confocal à fluorescence, dont on aperçoit ici l’objectif. Un nanodiamant contenant un centre NV unique est greffé sur la pointe de l’AFM et sert de magnétomètre.

Nous utilisons des pointes AFM de type Akiyama commercialisées par la société NanoSensors. Il s’agit d’un levier en silicium attaché aux deux bras d’un diapason en quartz (figure 2.3a). À l’extrémité du levier est fabriquée une pointe de forme oblique. Le mouvement du diapason dans le plan horizontal, excité par un transducteur piézoélectrique, induit alors un mouvement d’oscillation verticale de la pointe (figure 2.3b). Ce mouvement est détecté en démodulant le courant piézoélectrique du diapason. Les détails concernant le fonctionnement des pointes AFM Akiyama peuvent être trouvés dans la référence [98].

La pointe AFM est utilisée principalement en mode modulation d’amplitude : le diapason est excité à une fréquence fixe, proche de la résonance (~ 45 kHz), de sorte que l’amplitude d’oscillation de la pointe est directement liée à la distance pointe-échantillon. Pour réaliser une image AFM, une boucle de rétroaction ajuste la hauteur z de l’échantillon de manière à maintenir l’amplitude constante lors du balayage de l’échantillon dans le plan xy , permettant d’obtenir la topographie de l’échantillon. Ce mode d’imagerie est appelé mode contact intermittent. Un exemple d’image AFM est montré dans la figure 2.3c, révélant des nanodiamants dispersés sur une lame de verre.

Le microscope confocal à fluorescence

L’élément central du microscope de champ magnétique est le centre NV, qui est intégré à l’AFM en greffant un nanodiamant à l’extrémité de la pointe AFM. Cette procédure sera décrite dans la section 2.2.2.

Pour pouvoir utiliser le centre NV comme magnétomètre, un microscope à fluorescence doit également être construit autour de l’AFM. L’objectif de microscope doit alors combiner un grande ouverture numérique, afin de pouvoir détecter facilement la fluorescence d’un centre NV individuel, et une distance de travail aussi grande que possible pour permettre le positionnement de la pointe AFM à son foyer. Nous avons choisi un objectif Olympus MPLFLN100x, d’ouverture numérique 0.9 et de distance de travail 1 mm. Le système de pointe Akiyama décrit plus haut est alors suffisamment compact pour s’in-

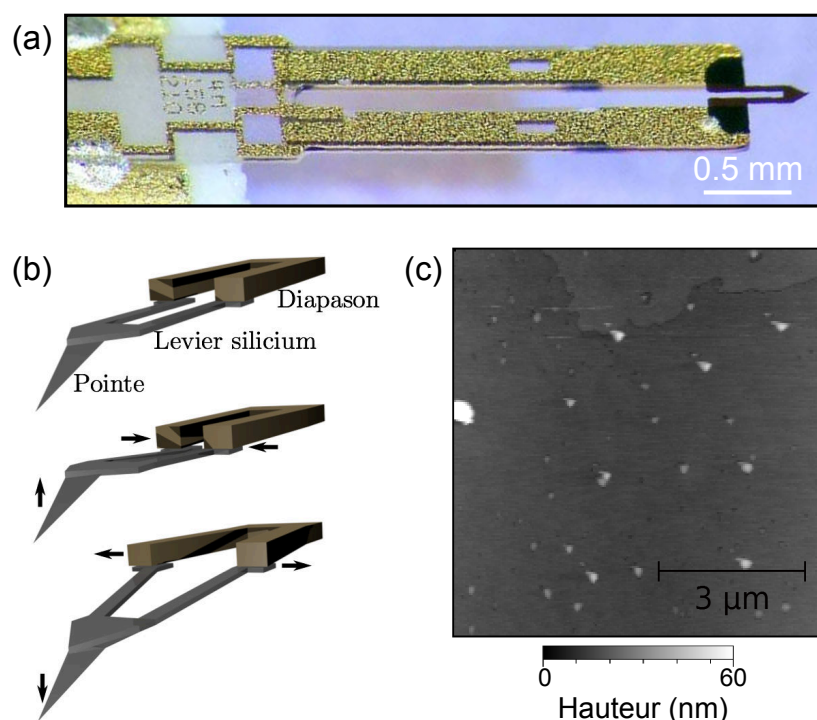


FIGURE 2.3 – (a) Photographie du système Akiyama (ensemble diapason + levier) vu de dessus, tirée du site internet du fabricant [97]. La pointe AFM est microfabriquée à l'extrémité d'un levier en silicium (partie sombre à droite), lequel est attaché aux deux bras d'un diapason en quartz (partie centrale, recouverte d'électrodes en or). (b) L'excitation de la résonance mécanique du diapason, qui correspond à un mouvement horizontal, permet de faire osciller la pointe verticalement. Ce mouvement est détecté électriquement via la mesure du courant piézoélectrique du diapason. Le schéma est tiré de la référence [54]. (c) Image AFM d'une lame de verre sur laquelle ont été dispersés des nanoparticules de diamant.

sérer entre l'objectif et l'échantillon (figure 2.2). Notons qu'une configuration alternative consiste à placer l'objectif sous l'échantillon. Il n'y a dans ce cas pas de contrainte d'encombrement concernant le système de pointe, la contrepartie étant que l'échantillon doit être nécessairement transparent pour que le faisceau optique atteigne le centre NV [99, 100].

Les autres éléments du microscope confocal à fluorescence sont disposés de manière similaire à ceux du microscope confocal décrit au chapitre précédent (cf. figure 1.11a). Il comprend un laser continu à 532 nm (Spectra-Physics Excelsior), un miroir dichroïque pour séparer la lumière de fluorescence de la lumière réfléchie, et un système de détection confocal muni d'un montage de type Hanbury Brown et Twiss (figure 2.4a).

Pour obtenir une image de fluorescence, l'échantillon peut être balayé à l'aide des scanners de l'AFM en gardant le faisceau laser immobile, ce qui permet d'obtenir des images de taille maximale $32 \times 32 \text{ } (\mu\text{m})^2$. Lorsque le faisceau laser est focalisé sur la pointe AFM, on peut également enregistrer une image topographique de l'échantillon corrélée à l'image de fluorescence. Par exemple, les figures 2.4b et figure 2.4c montrent des images AFM et confocales, respectivement, acquises simultanément en balayant une lame de verre sur laquelle sont dispersés des nanodiamants. On observe notamment que certains nanodiamants sont fluorescents, ce qui signifie qu'ils contiennent un ou plusieurs centres NV, tandis que d'autres n'émettent aucun signal. L'unicité des centres NV est

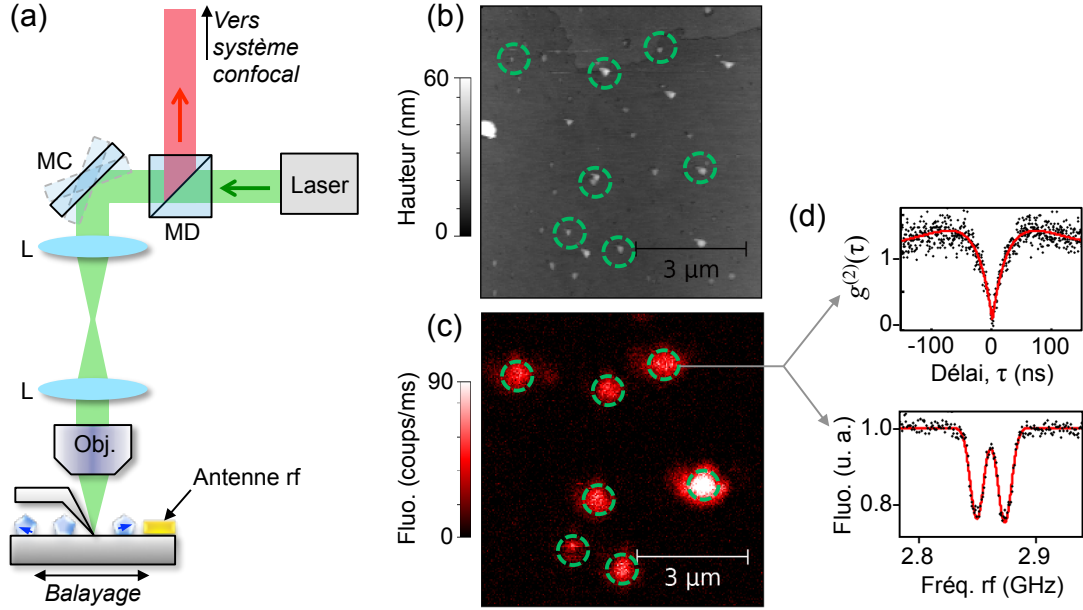


FIGURE 2.4 – (a) Schéma montrant le microscope à fluorescence combiné à l’AFM. L : lentille de focale 250 mm ; MD : miroir dichroïque ; MC : miroir contrôlable. (b,c) Images AFM (b) et confocale (c) d’un échantillon de nanodiamants dispersés sur une lame de verre. Les deux images sont obtenues simultanément en balayant l’échantillon sous la pointe AFM en mode contact intermittent. Le faisceau laser étant aligné avec l’extrémité de la pointe AFM, la position des spots fluorescents est corrélée à celle des particules visibles en topographie (voir cercles pointillés verts). (d) Graphes illustrant les deux mesures de pré-caractérisation réalisées pour sélectionner un nanodiamant : fonction d’autocorrélation du signal de fluorescence (haut) et spectre ESR (bas).

alors testée en enregistrant la fonction d’autocorrélation du signal de fluorescence $g^{(2)}(\tau)$ à l’aide du système Hanbury Brown et Twiss (figure 2.4d). Une valeur $g^{(2)}(0) \approx 0$ indique qu’il s’agit d’un centre NV unique (cf. § 1.4.2).

Afin de pouvoir enregistrer rapidement des images de fluorescence, nous avons ajouté, entre le miroir dichroïque et l’objectif, un miroir contrôlable (Newport FSM-300-02) associé à un système télécentrique – deux lentilles séparées par deux fois leur distance focale (figure 2.4a). Ce dispositif permet de balayer le faisceau laser en-dessous de l’objectif sur une zone de taille maximale $100 \times 100 (\mu\text{m})^2$. Il permet notamment d’enregistrer des images de fluorescence de la pointe AFM, et de positionner facilement le faisceau laser sur son extrémité.

Spectres ESR Pour enregistrer des spectres ESR, une antenne rf est placée directement sur l’échantillon. L’antenne consiste généralement en un fil de cuivre de diamètre 20 μm, ou bien en une piste en or définie par lithographie. Elle est reliée en court-circuit à la sortie d’un générateur rf (Rohde & Schwarz SMB100A, 9 kHz – 3.2 GHz) dont le signal est préalablement amplifié (Mini-Circuits ZHL-42). Le spectre ESR est obtenu en balayant la fréquence rf tout en mesurant l’intensité de fluorescence du centre NV (figure 2.4d). Il peut éventuellement être corrélé à l’oscillation de la pointe AFM au moyen d’un module de comptage (FastComTec P7887) synchronisé au module de contrôle de la pointe. Par ailleurs, un système de bobine à trois axes permet d’appliquer un champ magnétique

statique selon une direction arbitraire, avec une amplitude pouvant atteindre 3 mT.

L'ensemble du dispositif expérimental est contrôlé par un ordinateur central muni d'une carte multifonction (National Instruments NI PCIE-6321). Celle-ci est notamment utilisée pour mesurer le signal de fluorescence grâce à un compteur d'impulsions, pour générer les signaux analogiques basse-tension qui contrôlent le balayage xy de l'échantillon, et pour mesurer la hauteur z courante de l'échantillon. Celle-ci est ajustée par une boucle de rétroaction gérée par un module indépendant (Attocube ASC500), qui contrôle également l'oscillation de la pointe.

Nous allons maintenant décrire l'étape finale en vue de réaliser un microscope à centre NV, à savoir la fonctionnalisation de la pointe AFM par un nanodiamant contenant un centre NV unique.

2.2.2 Greffer un nanodiamant sur la pointe AFM

Les nanodiamants utilisés dans ce travail ont fait l'objet d'un développement de plusieurs années, décrit notamment dans la thèse de Loïc Rondin [54]. Ils sont vendus par la société Van Moppes (Suisse, solution SYP 0.25) sous forme de poudre fortement concentrée en impuretés d'azote (200 ppm). Les nanodiamants ont ensuite subi une irradiation électronique à 13.9 MeV pour créer des lacunes. L'irradiation est suivie d'un recuit à 800°C sous vide pendant 2 heures pour former des centres NV, et d'un nettoyage à l'acide pour supprimer la couche de graphite. Enfin, un recuit à 550°C sous oxygène pendant 2 heures est appliqué pour favoriser la formation de centres NV chargés négativement [101].

Les nanodiamants sont dispersés sur une lame de verre et caractérisés comme illustré dans la figure 2.4. L'image confocale (figure 2.4c) permet d'identifier les nanodiamants fluorescents, tandis que l'image AFM (figure 2.4b) permet d'estimer la taille de chaque particule (50 nm en moyenne) et vérifier qu'elle est bien isolée et non agrégée. Pour chaque nanodiamant fluorescent, on procède à la mesure de la fonction d'autocorrélation et du spectre ESR (figure 2.4d). Ces mesures permettent de pré-sélectionner un nanodiamant, qui doit contenir un centre NV unique et offrir une bonne sensibilité au champ magnétique par spectroscopie ESR (cf. § 1.3.5).

Pour greffer un nanodiamant sur la pointe AFM, nous procédons comme illustré dans la figure 2.5a. Une fois un nanodiamant repéré, on effectue un balayage AFM centré autour de celui-ci. À la différence des images AFM réalisées pour caractériser l'échantillon, pour lesquelles le mode contact intermittent est employé, ici un mode contact est utilisé afin d'augmenter la force exercée par la pointe sur le nanodiamant. Cela permet de greffer le nanodiamant sur la pointe avec une forte probabilité. L'accrochage est également facilité en trempant préalablement la pointe dans un polymère cationique (poly-L-lysine, EMS, poids moléculaire 30 – 70 kDa). Cette méthode, inspirée des travaux de l'équipe de S. Huant (Institut Néel, Grenoble [102, 103]) permet de tirer profit des forces ioniques entre la surface du nanodiamant, chargée négativement, et le polymère cationique.

On peut vérifier que le nanodiamant s'est bien accroché à la pointe AFM en constatant tout d'abord qu'il n'est plus sur la lame de verre (figure 2.5a). Puis, en balayant le faisceau laser à l'aide du miroir contrôlable, on acquiert une image de fluorescence de la pointe (figure 2.5b), qui présente un spot lumineux à son extrémité correspondant au nanodiamant accroché. On mesure ensuite la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ du signal issu de ce spot, ce qui permet de confirmer qu'on a bien un centre NV unique situé à l'extrémité de la pointe AFM (figure 2.5c). Nous allons maintenant caractériser ce centre NV en vue de son utilisation en tant que magnétomètre.

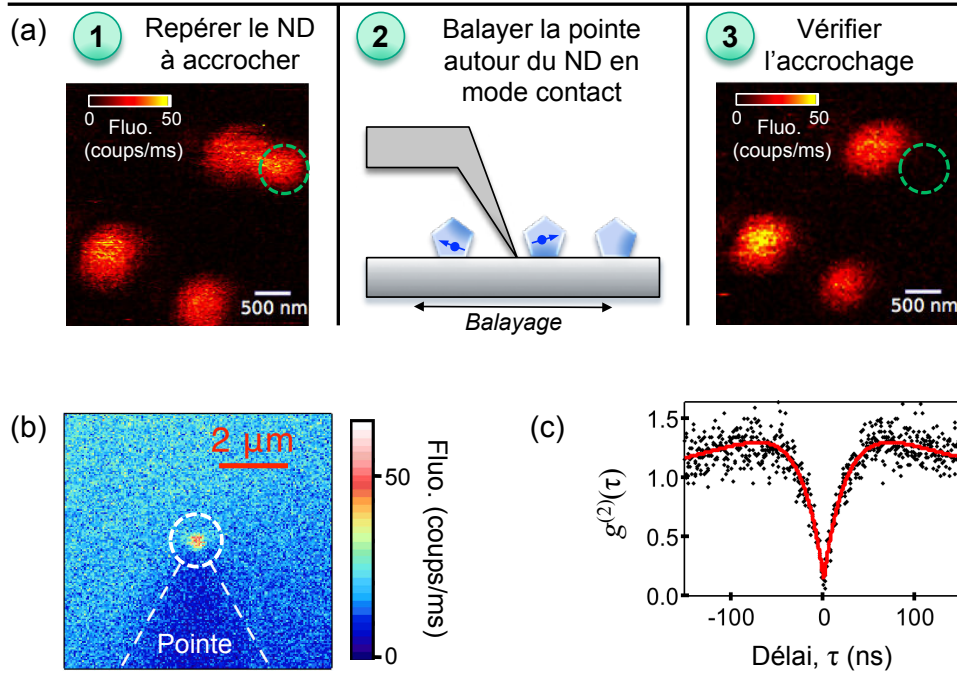


FIGURE 2.5 – (a) Procédure générale pour greffer un nanodiamant (ND) sur la pointe AFM : (1) un nanodiamant est choisi sur la base de ses performances en tant que magnétomètre (par exemple celui encerclé en vert) ; (2) la pointe AFM est balayée à proximité de ce nanodiamant en mode contact ; (3) une image confocale permet de vérifier que le nanodiamant n'est plus sur l'échantillon. (b) Image confocale de la pointe AFM obtenue en balayant le faisceau laser par rapport à la pointe. Un film d'or fluorescent a été placé en-dessous de la pointe afin de mettre en évidence la pointe via son ombre. Le spot brillant au milieu de l'image correspond au nanodiamant attaché. (c) Fonction d'auto-corrélation du signal de fluorescence venant de ce spot. Les données sont ajustées par la fonction $g^{(2)}(\tau) = 1 - A_1 e^{-\lambda_1 |\tau|} + A_2 e^{-\lambda_2 |\tau|}$. L'anticorrélation au délai nul, $g^{(2)}(0) \approx 0$, est la signature d'une source de photons uniques, donc d'un centre NV unique.

2.2.3 Caractérisation du magnétomètre greffé

Les spectres ESR d'un centre NV situé sur la pointe AFM sont obtenus en utilisant l'antenne rf placée sur l'échantillon. La figure 2.6a montre un exemple de spectre enregistré en champ magnétique nul, qui permet d'extraire les paramètres de clivage D et E (cf. § 1.3.1). On peut également en déduire la sensibilité au champ magnétique en utilisant la formule (1.24). Dans le présent exemple, le niveau de signal $\mathcal{R} \approx 5 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$, la largeur des raies $\Delta f_r \approx 20 \text{ MHz}$ et le contraste $\mathcal{C} \approx 0.2$ suggèrent une sensibilité $\eta \approx 15 \mu\text{T} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$.

Enfin, une information importante est l'orientation dans l'espace de l'axe de quantification du centre NV, de vecteur unitaire \mathbf{u}_{NV} (figure 2.6b). En effet, le magnétomètre à centre NV mesure essentiellement la projection du champ sur cet axe, $B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$ (cf. § 1.3.2). Pour mesurer cette orientation, caractérisée par les angles sphériques θ et ϕ dans le référentiel xyz du laboratoire, on applique un champ magnétique externe d'amplitude constante B selon la direction \mathbf{u}_B , caractérisée par les angles sphériques θ_B et ϕ_B (figure 2.6b). Ce champ est produit par un système de bobines à trois axes alignés avec le référentiel xyz . On mesure alors l'une des fréquences de résonance du centre NV, par exemple la fréquence supérieure f_+ , en fonction de la direction \mathbf{u}_B .

En prenant $B = 2 \text{ mT}$, le centre NV est dans le régime des champs faibles de sorte

que $f_+ = D + \frac{g_{NV}\mu_B}{h} B_{NV}$, où la projection du champ sur l'axe NV s'exprime selon

$$B_{NV} = B[\cos\theta_B \cos\theta + \sin\theta_B \sin\theta \cos(\phi_B - \phi)] . \quad (2.1)$$

Pour déterminer θ_B et ϕ_B , on procède en deux étapes. On fixe d'abord $\theta_B = 90^\circ$ et on balaye l'angle ϕ_B de 0 à 90° . Dans ce cas on a $B_{NV} \propto \cos(\phi_B - \phi)$, ce qui implique que f_+ est maximum lorsque $\phi_B = \phi$. On fixe ensuite $\phi_B = \phi$ et on balaye l'angle θ_B de 0 à 90° . Dans ce cas on a $B_{NV} \propto \cos(\theta_B - \theta)$, ce qui implique que f_+ est maximum lorsque $\theta_B = \theta$.

Un exemple de courbes $f_+ = f(\phi_B)$ et $f_+ = f(\theta_B)$, mesurées pour un centre NV accroché sur la pointe AFM, est montré dans les figures 2.6c et 2.6d. Les données sont ajustées en utilisant l'équation 2.1, avec θ et ϕ comme paramètres d'ajustement. On trouve ici $\theta = 49.6 \pm 0.1^\circ$ et $\phi = 124.7 \pm 0.1^\circ$ d'après l'ajustement. En réalité, la précision de la mesure est réduite par l'erreur de calibration des bobines ainsi que l'erreur de positionnement de ces bobines par rapport au référentiel xyz . Nous estimons à 2° l'incertitude globale

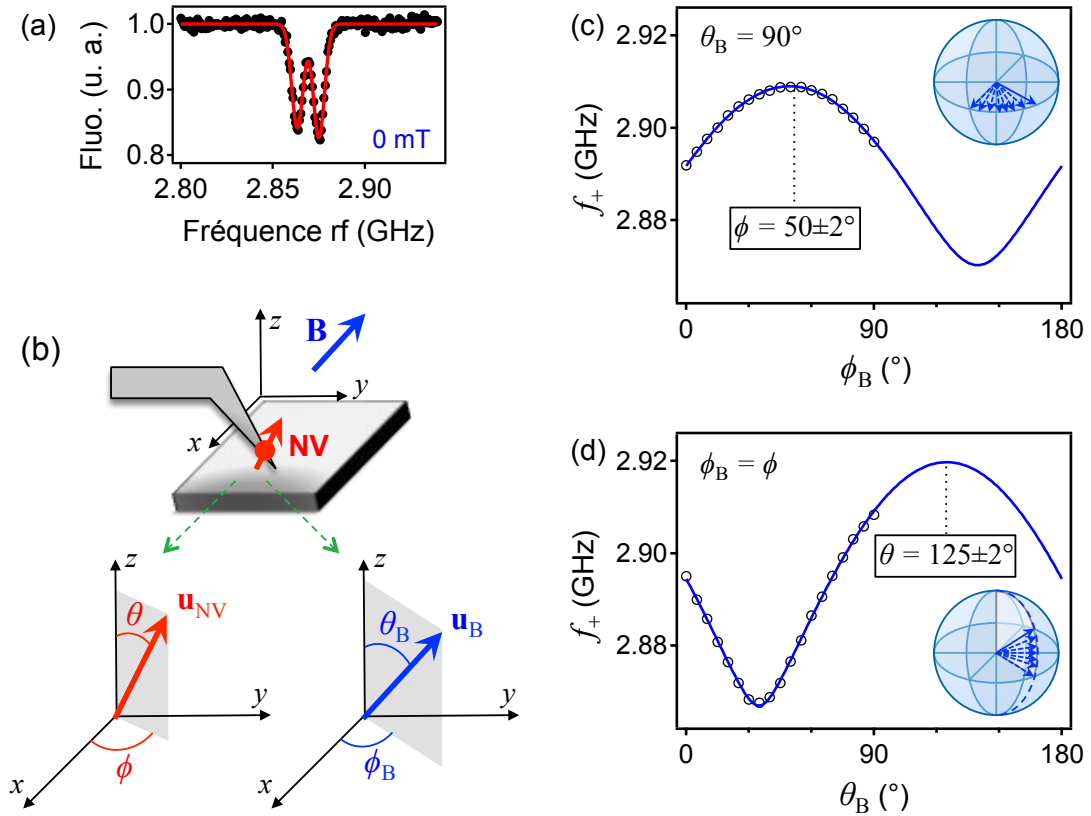


FIGURE 2.6 – (a) Spectre ESR en champ magnétique nul d'un centre NV situé sur la pointe AFM. La ligne continue est un ajustement par une somme de deux fonctions gaussiennes, duquel on déduit les paramètres de clivage $D \approx 2870$ MHz et $E \approx 6$ MHz. (b) Pour déterminer la direction de l'axe du centre NV dans le référentiel du laboratoire, caractérisée par les angles sphériques (θ, ϕ) , un champ magnétique externe \mathbf{B} est appliqué selon une direction (θ_B, ϕ_B) variable. (c,d) Fréquence de résonance f_+ en fonction de l'angle ϕ_B à $\theta_B = 90^\circ$ fixé (c), et en fonction de l'angle θ_B à $\phi_B = \phi$ fixé (d), mesurée pour un centre NV accroché sur la pointe AFM. Les lignes continues sont l'ajustement aux données (voir texte), permettant de déduire les valeurs de ϕ et θ avec une précision de 2° .

sur la mesure des angles, ce qui donne dans notre exemple $\theta = 50 \pm 2^\circ$ et $\phi = 125 \pm 2^\circ$. Notons que seule la direction de \mathbf{u}_{NV} peut être obtenue car le sens du vecteur n’affecte pas l’apparence des spectres ESR (cf. § 1.3.4). Les angles θ et ϕ sont donc définis tels que $\theta \in [0, \pi[$ et $\phi \in [-\pi/2, \pi/2[$.

En résumé, nous avons réalisé un microscope à centre NV en greffant un nanodiamant sur la pointe d’un AFM. L’étape d’accrochage est désormais réalisée de manière routinière, ce qui permet d’obtenir des magnétomètres présentant différents axes de projection. Nous allons maintenant tester effectivement ce microscope de champ magnétique en tentant de cartographier le champ de fuite généré par des plots ferromagnétiques de taille micrométrique.

2.3 Imagerie de microplots ferromagnétiques

Le but de cette section est de démontrer le potentiel de la microscopie à centre NV pour l’étude de microstructures ferromagnétiques. Pour cela, nous commencerons par étudier des microdisques de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ présentant un état vortex (§ 2.3.1). Nous testerons différents modes d’imagerie basés sur la spectroscopie ESR, et montrerons qu’il est possible de cartographier, de manière quantitative, le champ de fuite du cœur du vortex (§ 2.3.2). Cela nous permettra notamment de discuter de la résolution spatiale du microscope (§ 2.3.3). Enfin, nous imagerons le champ de fuite produit par des plots de forme carrée, de manière vectorielle et tridimensionnelle (§ 2.3.4).

2.3.1 Un microdisque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ comme échantillon test

Nous considérons ici des disques de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (ou permalloy) de diamètre $1\ \mu\text{m}$ et d’épaisseur $50\ \text{nm}$. Ils ont été fabriqués sur un substrat de silicium par Stanislas Rohart (Laboratoire de Physique des Solides, Orsay) par lithographie électronique, évaporation du métal et un processus de lift-off. Une image AFM d’un de ces disques est montrée dans la figure 2.7a.

Le permalloy étant un matériau ferromagnétique sans anisotropie magnétocristalline, l’énergie micromagnétique est ici dominée par l’interaction d’échange, qui favorise une distribution d’aimantation uniforme, et l’énergie démagnétisante, qui favorise les distributions générant peu de charges magnétiques. Dans le cas d’un disque mince de diamètre de l’ordre du micromètre, l’état fondamental est l’état “vortex”, pour lequel l’aimantation est principalement parallèle au plan du film et tourne autour du centre du disque, comme illustré dans les figures 2.7a et 2.7b [104]. Cette structure en vortex permet de minimiser le nombre de charges magnétiques sur les bords du disque, et donc l’énergie démagnétisante.

Au centre du disque, pour éviter une configuration de spins antiparallèles, l’aimantation sort du plan dans une région appelée le cœur de vortex. La taille de ce cœur est le résultat d’un compromis entre énergie d’échange et énergie démagnétisante. Pour un disque infiniment mince, le rayon caractéristique (mi-largeur à mi-hauteur de la composante de l’aimantation perpendiculaire au plan, M_z) est ainsi $r_0 \sim \Lambda$, où $\Lambda = \sqrt{2A/(\mu_0 M_s^2)}$ est la longueur d’échange, avec A la constante d’échange et M_s l’aimantation à saturation. Pour le permalloy, on a $\Lambda \approx 5.7\ \text{nm}$ en supposant $M_s = 800\ \text{kA/m}$ et $A = 13\ \text{pJ/m}$. Pour un disque d’épaisseur finie (ici $50\ \text{nm}$), les calculs micromagnétiques montrent que le cœur de vortex présente une forme en “tonneau”. Le rayon moyenné à travers l’épaisseur de la couche magnétique vaut alors $r_0 \approx 13\ \text{nm}$ [105].

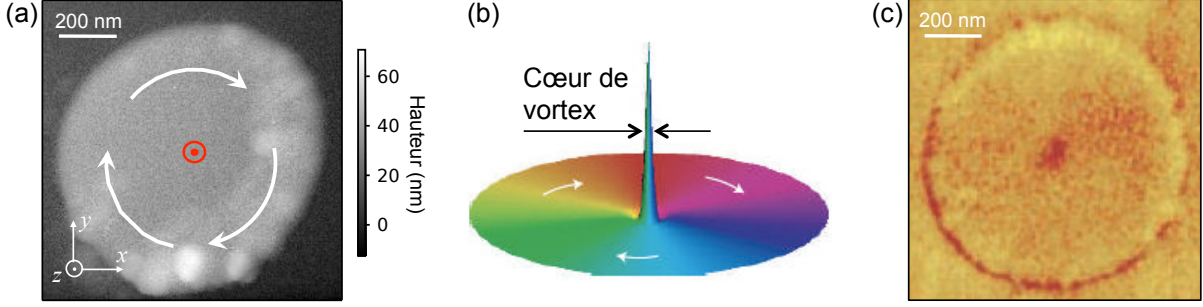


FIGURE 2.7 – (a) Image AFM d'un disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. Les flèches blanches représentent l'aimantation planaire de l'état vortex, la flèche rouge pointant vers le haut au centre représente l'aimantation du cœur de vortex. (b) Distribution de l'aimantation du disque dans l'état vortex. Le code couleur décrit la direction de l'aimantation dans le plan, tandis que la hauteur décrit la composante perpendiculaire M_z . (c) Image de microscopie à force magnétique d'un disque similaire à celui montré en (a), tirée de la référence [1]. La tâche sombre au centre du disque correspond au cœur de vortex.

Puisque le microscope à centre NV est sensible au champ magnétique et non à l'aimantation, il convient de considérer le champ de fuite généré par la distribution d'aimantation de l'échantillon. Dans le cas de la structure vortex, les seules charges magnétiques sont celles liées au cœur. Elles génèrent un champ de fuite qui, en première approximation, est similaire à celui d'un dipôle magnétique dirigé selon l'axe z , pointant vers le haut ou vers le bas selon la polarité du cœur. Le cœur de vortex est ainsi un objet magnétique quasi-ponctuel idéal pour caractériser le microscope.

Les structures de vortex magnétiques présentent un intérêt non seulement pour des études fondamentales en nanomagnétisme [106], mais aussi pour des applications en stockage de l'information [107] et pour la réalisation de sources compactes de micro-ondes [108]. Le cœur de vortex a été observé pour la première fois en 2000 par microscopie à force magnétique [1] (figure 2.7c), mais l'imager et cartographier son champ de fuite de manière quantitative reste une tâche très difficile du fait de sa taille nanométrique. Nous allons maintenant tenter d'imager un cœur de vortex avec le microscope à centre NV.

2.3.2 Différents modes d'imagerie

Nous allons voir ici quelles sont les différentes manières d'imager le champ de fuite d'une structure magnétique avec le microscope à centre NV. Nous illustrerons ces techniques sur le disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ montré dans la figure 2.7a.

Dans toute cette section, nous considérerons la magnétométrie à centre NV basée sur la spectroscopie ESR, pour laquelle les résonances de spin du centre NV sont détectées via un changement de l'intensité de fluorescence du centre NV. Dans le régime linéaire, les fréquences de résonance s'écrivent $f_{\pm} \approx D \pm \tilde{\gamma}_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$, où B_{NV} est la valeur locale du champ projeté selon l'axe NV et $\tilde{\gamma}_{\text{NV}} = \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h}$ est le facteur gyromagnétique du centre NV (cf. § 1.3.1).

La manière la plus “naturelle” pour imager un échantillon magnétique consisterait à acquérir un spectre ESR en chaque pixel de l'image, c'est-à-dire à mesurer le signal de fluorescence $\mathcal{S}(f_{\text{rf}})$ en fonction de la fréquence f_{rf} de l'onde rf appliquée, balayée autour de la résonance. Comme $\mathcal{S}(f_{\text{rf}})$ présente une chute lorsque $f_{\text{rf}} = f_{\pm}$, on en déduit la

valeur de f_{\pm} et donc de B_{NV} . Cependant, plusieurs dizaines de secondes d'intégration sont généralement nécessaires pour obtenir un spectre exploitable, avec un rapport signal-sur-bruit suffisant. Cela implique des durées d'acquisition de l'ordre de la dizaine d'heures par image. Bien que cela soit envisageable si la stabilité du système peut être préservée pendant une telle durée, il est indispensable de disposer de techniques plus rapides pour imager la distribution du champ de fuite, ne serait-ce que pour la pré-caractériser avant de se lancer dans une acquisition plus longue.

Imagerie de contours iso-champ

Plutôt que de balayer f_{rf} , il est possible de fixer la fréquence rf à une valeur donnée $f_{\text{rf},i}$ et mesurer le signal de fluorescence $\mathcal{S}(f_{\text{rf},1})$ du centre NV en chaque pixel de l'image. Expérimentalement, cela revient à mesurer le taux de fluorescence du centre NV situé sur la pointe AFM tout en balayant l'échantillon dans le plan xy , à fréquence rf $f_{\text{rf}} = f_{\text{rf},i}$ constante. On observera alors une chute du signal de fluorescence seulement lorsque B_{NV} prend une valeur particulière $B_{\text{NV},i}$ satisfaisant la condition de résonance

$$f_{\text{rf},i} \approx D \pm \tilde{\gamma}_{\text{NV}} B_{\text{NV},i} . \quad (2.2)$$

Il est ainsi possible d'obtenir une image présentant un "contour iso-champ" correspondant à la valeur $B_{\text{NV}} = B_{\text{NV},i}$.

Ce principe est illustré dans la figure 2.8a, et deux exemples d'images iso-champ du disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ sont montrés dans les figures 2.8b et 2.8c, correspondant à deux fréquences $f_{\text{rf},1}$ et $f_{\text{rf},2}$ différentes. Deux éléments sont à remarquer sur ces images. D'abord,

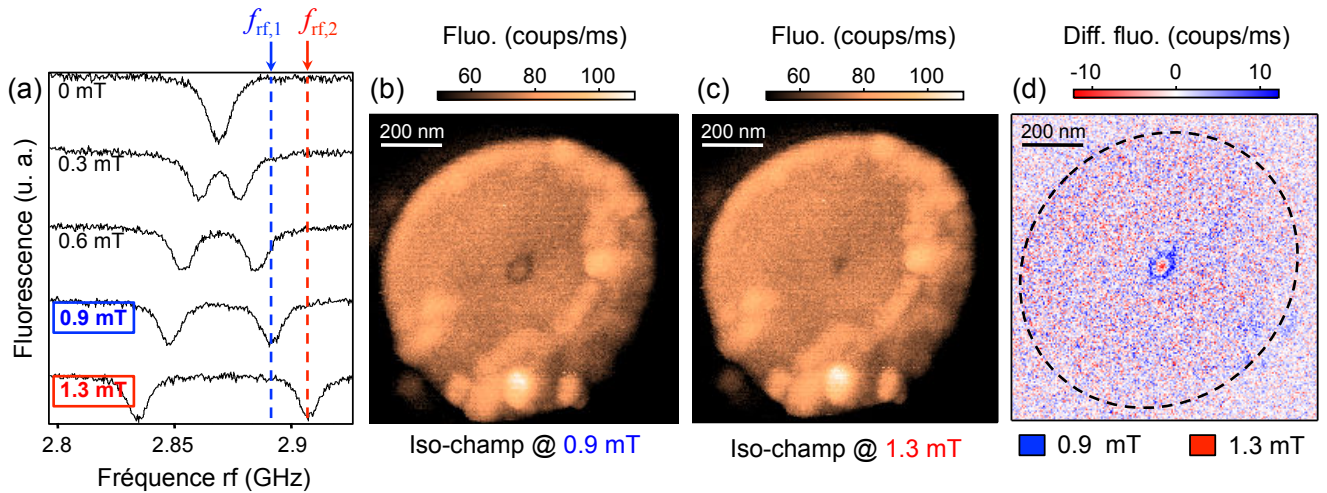


FIGURE 2.8 – (a) Série de spectres ESR correspondant à différentes valeurs de champ magnétique B_{NV} , permettant d'illustrer les techniques d'imagerie iso-champ. (b,c) Image de fluorescence du centre NV, acquise sur le disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ avec une onde rf de fréquence $f_{\text{rf},1} = 2895$ MHz (b) ou $f_{\text{rf},2} = 2905$ MHz (c) appliquée en continue. Les contours iso-champ résultants correspondent à $B_{\text{NV},1} = 0.9$ mT et $B_{\text{NV},2} = 1.3$ mT, respectivement. L'axe du centre NV est caractérisé par des angles sphériques ($\theta = 59^\circ$, $\phi = -15^\circ$) dans le référentiel xyz défini dans la figure 2.7a. (d) Différence des images (b) et (c), montrant le contour iso-champ à $B_{\text{NV},1} = 0.9$ mT en bleu (signal positif) et celui à $B_{\text{NV},2} = 1.3$ mT en rouge (signal négatif). Le temps d'intégration par pixel est de 30 ms en (b) et (c), et donc de 60 ms en (d).

la fluorescence varie de manière corrélée à la topographie de l’échantillon, le signal étant plus intense sur le disque que sur le substrat. Ces variations ne sont pas liées à la distribution du champ magnétique puisqu’elles sont identiques dans les deux images, et ne nous intéressent donc pas ici. D’autre part, ce qui différencie les deux images est le motif sombre au centre du disque : un anneau dans la figure 2.8b, un point dans la figure 2.8c. Ces motifs sont des contours iso-champ associés dans le cas présent aux valeurs de champ $B_{\text{NV},1} = 0.9 \text{ mT}$ et $B_{\text{NV},2} = 1.3 \text{ mT}$, respectivement, et correspondent au champ de fuite généré par le cœur de vortex.

Les variations de fluorescence non corrélées à la distribution du champ de fuite ne sont pas désirables. Une solution simple pour s’affranchir de ces variations est de normaliser l’image iso-champ en lui soustrayant une image de référence. Pour optimiser le gain d’information, il est judicieux d’utiliser une autre image iso-champ comme référence. Cela revient à soustraire deux images iso-champ correspondant à deux fréquences $f_{\text{rf},1}$ et $f_{\text{rf},2}$ différentes. On définit alors le signal différentiel

$$\mathcal{D}(f_{\text{rf},1}, f_{\text{rf},2}) = \mathcal{S}(f_{\text{rf},2}) - \mathcal{S}(f_{\text{rf},1}) . \quad (2.3)$$

Comme \mathcal{S} présente une chute de signal à la résonance, la différence \mathcal{D} est positive lorsque le champ vaut $B_{\text{NV},1}$ et négative lorsqu’il vaut $B_{\text{NV},2}$. La figure 2.8d montre l’exemple d’une telle image iso-champ différentielle, obtenue à partir des images iso-champ simples des figures 2.8b et 2.8c. Elle présente ainsi deux contours iso-champ, à $B_{\text{NV},1} = 0.9 \text{ mT}$ en bleu (signal positif) et $B_{\text{NV},2} = 1.3 \text{ mT}$ en rouge (signal négatif). Les variations de signal communes aux images non normalisées sont efficacement rejetées.

En pratique, il est préférable de réaliser la normalisation au cours de l’acquisition. Pour chaque pixel de l’image, les valeurs de $\mathcal{S}(f_{\text{rf},1})$ et $\mathcal{S}(f_{\text{rf},2})$ sont donc mesurées consécutivement. Par exemple, la figure 2.8d a été obtenue en alternant $f_{\text{rf},1}$ et $f_{\text{rf},2}$ toutes les 30 ms, soit un temps d’acquisition de 60 ms par pixel et de 40 minutes pour l’image complète (200×200 pixels). Le temps d’intégration par fréquence et par pixel (ici 30 ms) est choisi selon le rapport signal-sur-bruit désiré.

Ce mode d’imagerie iso-champ permet ainsi d’obtenir facilement, et relativement rapidement, un aperçu de la distribution du champ de fuite de l’échantillon. Par exemple, l’image de la figure 2.8d révèle deux contours iso-champ du champ de fuite d’un cœur de vortex, selon un axe de projection donné ($\theta = 59^\circ, \phi = -15^\circ$). Il est néanmoins possible, sous certaines conditions, d’extraire plus d’information que simplement deux contours iso-champ sans dégrader significativement la vitesse d’acquisition. Nous allons voir en particulier deux stratégies possibles pour mesurer la valeur du champ B_{NV} en tout point de l’image.

Cartographie quantitative du champ

Le but ici est de déterminer, en tout point de l’image, l’une des deux fréquences de résonance de spin, par exemple la fréquence supérieure notée $f_r = f_+ \approx D + \tilde{\gamma}_{\text{NV}} B_{\text{NV}}$, sans avoir à balayer la fréquence rf f_{rf} sur un intervalle couvrant toute la gamme de variation de f_r .

Nous avons pour cela implémenté deux méthodes, illustrées dans les figures 2.9a et 2.9b. Ces deux méthodes sont basées sur le suivi actif de la fréquence de résonance. Plutôt que de balayer f_{rf} sur une large gamme de fréquences, f_{rf} est balayée à proximité de la position courante de la résonance f_r , et la fenêtre de balayage est ajustée en temps réel via une boucle de rétroaction de manière à “suivre” la résonance.

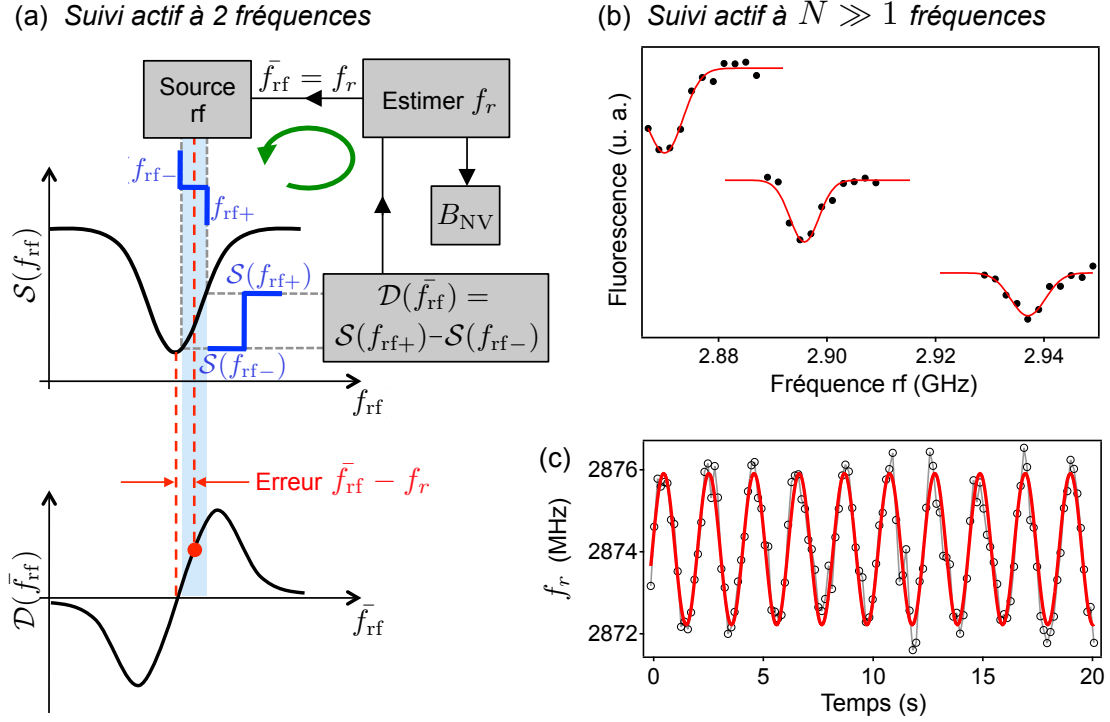


FIGURE 2.9 – (a,b) Illustration des techniques de suivi actif de la résonance, par mesure différentielle à 2 fréquences (a) et par spectroscopie à $N \gg 1$ fréquences (b). Dans les deux cas, une boucle de rétroaction agit sur les fréquences rf appliquées afin de suivre la résonance en temps réel (voir détails dans le texte). (c) Mesure en temps réel d'un champ magnétique oscillant à une fréquence de 0.5 Hz en utilisant le suivi actif à 2 fréquences. Les paramètres de la boucle de rétroaction sont $\mathcal{A} = 5000 \text{ s}^{-1} \cdot \text{MHz}^{-1}$ et $\Delta f = 5 \text{ MHz}$, et le temps d'échantillonnage est de 100 ms.

La première méthode, inspirée de celle proposée dans la référence [109], est la plus rapide car elle n'utilise que deux fréquences par point d'acquisition, notées $f_{\text{rf}\pm} = \bar{f}_{\text{rf}} \pm \Delta f/2$ (figure 2.9a). \bar{f}_{rf} est la moyenne des deux fréquences, qui est ajustée pour suivre la résonance, tandis que Δf est une constante. En chaque point, le signal différentiel $\mathcal{D}(\bar{f}_{\text{rf}}) = \mathcal{S}(f_{\text{rf}+}) - \mathcal{S}(f_{\text{rf}-})$ est mesuré. $\mathcal{D}(\bar{f}_{\text{rf}})$ agit comme un signal d'erreur, qui s'annule lorsque $\bar{f}_{\text{rf}} = f_r$. La boucle de rétroaction ajuste donc \bar{f}_{rf} en temps réel de manière à minimiser $\mathcal{D}(\bar{f}_{\text{rf}})$.

En pratique, une correction proportionnelle est utilisée, c'est-à-dire qu'on utilise directement l'approximation linéaire

$$\mathcal{D}(\bar{f}_{\text{rf}}) \approx \mathcal{A} \times (\bar{f}_{\text{rf}} - f_r) \quad (2.4)$$

où \mathcal{A} est la dérivée première de $\mathcal{D}(\bar{f}_{\text{rf}})$ évaluée en f_r . Une fois f_r estimée avec cette formule, \bar{f}_{rf} est ajustée à la nouvelle position de la résonance, soit $\bar{f}_{\text{rf}} = f_r$. Une illustration de cette technique est montrée dans la figure 2.9c. Un champ magnétique oscillant sinusoïdalement à une fréquence de 0.5 Hz est appliqué avec une bobine. Le centre NV situé sur la pointe AFM est capable de suivre l'évolution de ce champ avec un temps d'échantillonnage de 100 ms, soit 50 ms par point et par fréquence [35].

La deuxième technique que nous avons implémentée utilise également une boucle de rétroaction pour suivre f_r . Ici, un spectre ESR comportant un nombre N de fréquences réduit au minimum est enregistré en chaque pixel. Ce spectre permet d'une part de déter-

miner f_r et donc B_{NV} , d'autre part de recentrer la fenêtre de balayage en fréquence pour le point de mesure suivant. Typiquement, on prend $N = 11$ avec un pas d'échantillonnage de 2 MHz, soit une fenêtre de balayage de 20 MHz. Avec un temps d'intégration de 40 ms par fréquence, le temps par pixel est de 440 ms. La figure 2.9b montre quelques spectres ESR obtenus avec ces paramètres. Après ajustement des données par une fonction gaussienne, la résonance f_r est déduite avec une incertitude < 1 MHz.

Appliquées à la mesure du champ de fuite d'un échantillon magnétique, ces deux stratégies ont chacune leurs avantages et inconvénients. Si la technique à deux fréquences est plus rapide, elle est en contrepartie moins précise et moins robuste que la technique à N fréquences. En effet, la valeur exacte de la constante proportionnelle \mathcal{A} peut varier au cours d'une acquisition, notamment lorsque le contraste ESR baisse en raison d'une forte composante B_{\perp} (cf. § 1.3.3) ou lorsque la raie ESR s'élargit du fait de l'oscillation de la pointe dans un gradient de champ (cf. § 2.3.3). Le choix d'une technique ou l'autre dépendra donc des conditions particulières et du degré de précision recherché.

Pour imager le champ du cœur de vortex, la technique à deux fréquences s'est avérée suffisante. La figure 2.10b montre la carte de B_{NV} obtenue avec un temps d'intégration de 100 ms par pixel. Cette image est cohérente avec l'image iso-champ obtenue sur la même zone de l'échantillon (figure 2.10a). On voit en particulier que le champ atteint 1.3 mT au maximum, ce qui est la valeur de l'un des contours iso-champ utilisés.

La figure 2.10b représente donc une image quantitative du champ de fuite d'un cœur

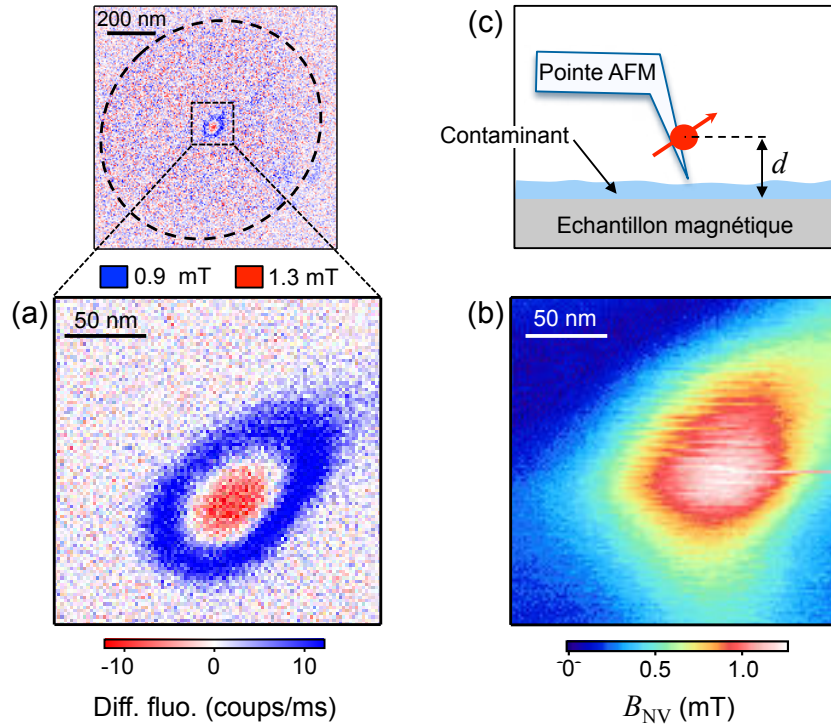


FIGURE 2.10 – (a) Image iso-champ différentielle du centre du disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, montrant une vue agrandie de la figure 2.8d et mettant en évidence le champ de fuite du cœur de vortex. (b) Carte quantitative du champ dans la même zone que (a), obtenue par la technique de suivi actif à 2 fréquences. Le temps d'intégration par pixel est de 300 ms en (a) et 100 ms en (b). (c) La hauteur de vol d est définie comme la distance entre le centre NV et la surface supérieure de l'échantillon magnétique. Les images (a) et (b) sont obtenues à une distance d constante, mais inconnue a priori.

de vortex projeté selon un axe donné, ce qui n'avait jamais été réalisé auparavant. La tâche de champ observée présente une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 100 nm. Pourtant, nous savons que le diamètre moyen du cœur de vortex à l'intérieur du film est environ quatre fois plus petit ($2r_0 \approx 26$ nm, cf. § 2.3.1). Cette différence est liée au fait que le centre NV est balayé à une certaine distance d de l'échantillon, appelée traditionnellement "hauteur de vol" (figure 2.10c). Comme dans toutes les techniques de microscopie à sonde locale, la taille des plus petits détails apparaissant dans les images est limitée par la hauteur de vol, qui vaut donc ici $d \sim 100$ nm. Nous allons maintenant chercher à estimer cette distance de manière plus précise, puis nous discuterons de son lien avec la résolution spatiale du microscope.

2.3.3 Résolution spatiale

Estimation de la hauteur de vol

La hauteur de vol d est définie comme la distance entre la sonde de champ magnétique – le centre NV – et la surface supérieure de l'échantillon magnétique (figure 2.10c). Le centre NV se trouve à une position inconnue dans le nanodiamant, qui lui-même se trouve à une position inconnue par rapport à l'extrémité de la pointe AFM. De plus, une fine couche d'un contaminant, de l'eau par exemple, peut être présente entre la pointe et l'échantillon. Pour toutes ces raisons, il est difficile d'estimer a priori la hauteur de vol.

Toutefois, nous pouvons utiliser les images de champ magnétique pour estimer d a posteriori. En particulier, les paramètres magnétiques et géométriques du disque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ imagé ici étant relativement bien connus, on peut comparer directement l'image expérimentale à la théorie afin d'en déduire la distance d qui donne la meilleure correspondance.

Pour cela, nous avons réalisé des simulations numériques du champ de fuite généré par le disque, en suivant la procédure décrite dans l'annexe A. La distribution d'aimantation \mathbf{M} à l'intérieur du disque est d'abord obtenue à l'aide du logiciel OOMMF [110] en discrétisant la structure en cellules parallélépipédiques, de taille $2 \times 2 \times 2$ (nm)³ et d'aimantation uniforme (cf. § A.2.1). Puis la distribution du champ de fuite \mathbf{B} à la distance d est calculée avec le logiciel MATLAB en sommant les contributions de toutes les cellules (cf. § A.1.2). Dans le cas du disque dans l'état vortex, le champ de fuite est localisé au centre du disque, au-dessus du cœur de vortex. La figure 2.11a montre les distributions dans le plan xy des trois composantes de ce champ, B_x , B_y et B_z , pour une distance $d = 100$ nm. Ces distributions ont une forme similaire à celle du champ généré par un dipôle magnétique orienté selon z , comme attendu pour un cœur de vortex.

Pour comparer à l'image expérimentale, il convient ensuite de projeter le champ \mathbf{B} sur l'axe du centre NV, dont l'orientation est connue. On obtient ainsi la carte théorique de B_{NV} . Le résultat de ce calcul est montré dans la figure 2.11b pour différentes valeurs de d entre 80 et 100 nm. B_z étant la composante dominante dans le cas présent, les distributions de B_{NV} présentent une tâche principale à l'instar de B_z , avec une légère déformation due à l'inclinaison de l'axe NV par rapport à l'axe z .

La comparaison avec l'image expérimentale (figure 2.11c) montre un bon accord général. La différence de forme de la distribution entre l'expérience et la simulation est attribuée aux imperfections de fabrication (rugosité des bords du disque et de la surface du film magnétique). Comme la valeur du maximum varie rapidement avec d , on peut utiliser ce critère pour estimer la hauteur de vol. La meilleure correspondance est obtenue pour $d = 90$ nm, correspondant à un champ maximum de 1.3 mT comme dans l'expérience, contre 1.7 mT à 80 nm et 1.0 mT à 100 nm.

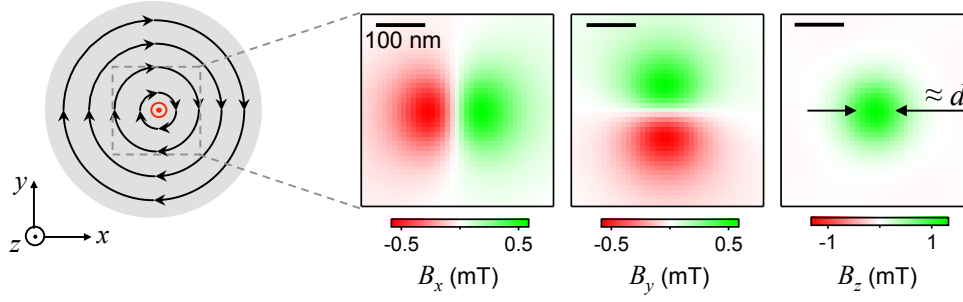
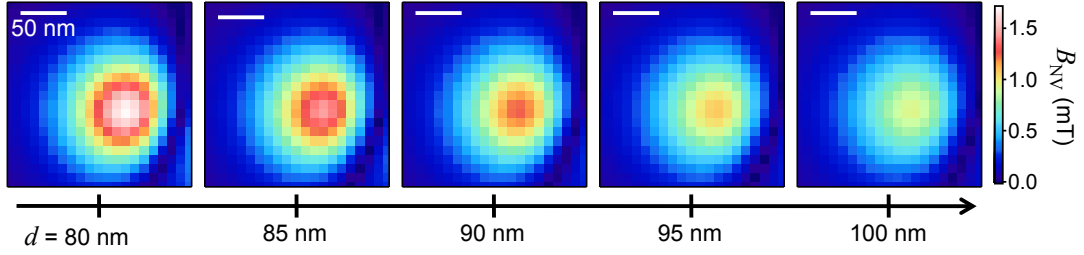
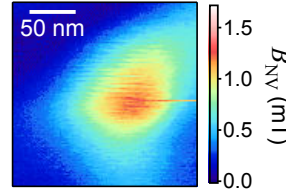
(a) Simulations B_x, B_y, B_z à $d = 100$ nm

 (b) Simulations B_{NV} en fonction de d

 (c) Expérience B_{NV} à d inconnue


FIGURE 2.11 – (a) Simulations numériques des composantes B_x, B_y et B_z du champ de fuite à une distance $d = 100$ nm au-dessus du cœur de vortex. (b) Simulations de la composante B_{NV} à une distance d variant de 80 nm (gauche) à 100 nm (droite). (c) Carte de B_{NV} enregistrée au-dessus du cœur de vortex, reproduite de la figure 2.10b.

Outre la valeur maximale du champ, les simulations à différentes distances se distinguent également par un “étalement” différent de la tâche de champ, caractérisé par une largeur à mi-hauteur approximativement égale à d . Cet effet est caractéristique d’une source localisée dont on observe le champ à une distance d finie. Dans le cas du cœur de vortex, c’est ce qui explique pourquoi la tâche de champ présente une largeur à mi-hauteur de l’ordre de 100 nm alors que le diamètre moyen du cœur à l’intérieur du film est quatre fois plus petit ($2r_0 \approx 26$ nm, cf. § 2.3.1).

Dans cette expérience, le nanodiamant utilisé a une taille d’environ 40 nm, mesurée par AFM avant son accrochage sur la pointe. Par conséquent, on pourrait s’attendre à trouver une distance d inférieure à 40 nm, bien en-dessous de la distance de 90 nm déduite ci-dessus. Plus généralement, nous atteignons dans nos expériences des hauteurs de vol de l’ordre de 100 nm en moyenne (minimum 40 nm, maximum 300 nm), avec des nanodiamants de taille comprise entre 20 et 80 nm. Cet écart systématique peut s’expliquer par le fait que le nanodiamant n’est pas exactement situé au bout de la pointe, et/ou par l’existence d’un espace incompressible entre le bout de la pointe et la surface de l’échantillon, causé par exemple par une couche d’eau ou d’un contaminant.

Par ailleurs, un autre effet peut également contribuer à augmenter la hauteur de vol

apparente. Il s'agit du mouvement oscillant de la pointe opérée en mode contact intermittent, qui implique une distance dépendant du temps $d(t)$ dont la valeur moyenne \bar{d} est nécessairement plus grande que son minimum (figure 2.12a). Nous allons maintenant nous attacher à quantifier cette contribution.

Estimation de l'amplitude d'oscillation de la pointe

Pour évaluer l'amplitude d'oscillation de la pointe, nous avons réalisé des mesures de champ magnétique résolues en temps [37]. Pour cela, la détection du signal de fluorescence est synchronisée avec l'oscillation de la pointe grâce à un module de comptage dédié. Il est ainsi possible d'enregistrer un spectre ESR de façon stroboscopique, en n'intégrant le signal qu'à certains instants choisis correspondant à une position donnée de la pointe (figure 2.12a).

La figure 2.12b montre des spectres ESR enregistrés en plaçant la pointe au-dessus du cœur de vortex. La position de la résonance est clairement décalée lorsque la pointe est au plus bas de son oscillation, comparativement à sa position la plus haute. La fréquence de résonance f_r est ensuite extraite des spectres ESR, et convertie en champ magnétique B_{NV} . La figure 2.12c, qui représente B_{NV} en fonction de la position de la pointe, révèle une variation de B_{NV} de 10% de part et d'autre de la valeur moyenne. Pour obtenir un

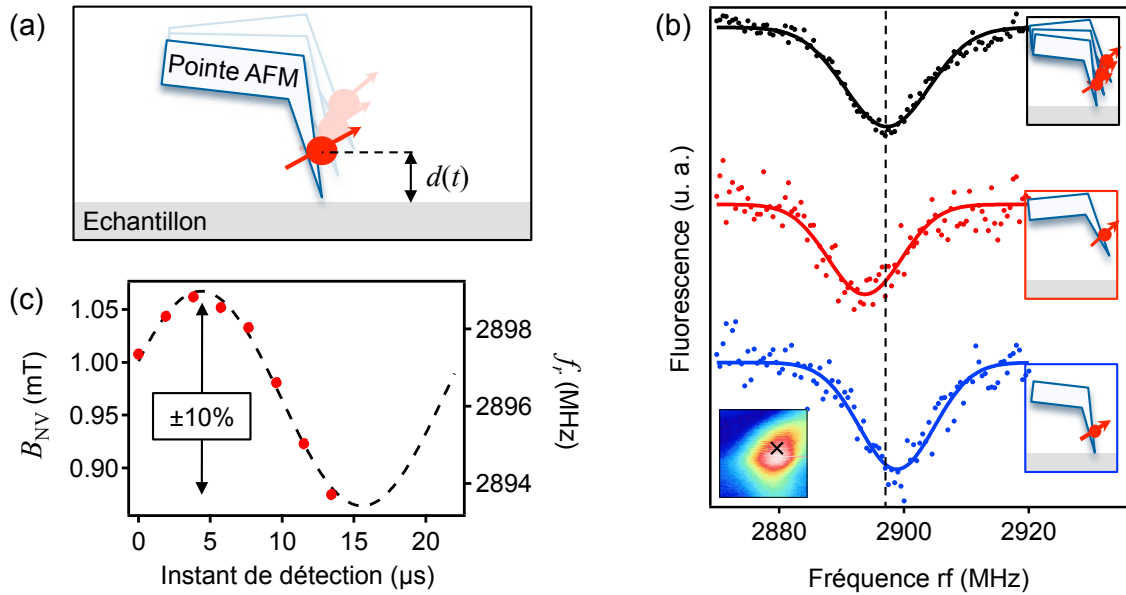


FIGURE 2.12 – (a) Expérimentalement, le centre NV se trouve à une distance $d(t)$ qui oscille avec le temps en raison de l'oscillation mécanique de la pointe. (b) Spectres ESR enregistrés avec la pointe placée au-dessus du cœur de vortex (voir croix en insert). Le spectre du haut est obtenu en moyennant sur l'oscillation de la pointe. Les deux autres spectres sont obtenus en synchronisant la détection du signal avec l'oscillation de la pointe. Le spectre du milieu (resp. du bas) est un spectre ESR instantané correspondant à la pointe en position haute (resp. basse). Les lignes continues sont des ajustements gaussiens. (c) Fréquence de résonance f_r et champ magnétique B_{NV} correspondant, en fonction de l'instant de détection choisi dans la période d'oscillation de la pointe. La ligne pointillée est une fonction sinusoïdale à la fréquence d'oscillation de la pointe (45 kHz). La variation relative de champ magnétique est d'environ 10%.

ordre de grandeur de l'amplitude de l'oscillation spatiale de la pointe correspondant à cette oscillation de champ, on peut utiliser les simulations du champ généré par le cœur de vortex (cf. figure 2.11a). On trouve ici que B_{NV} varie essentiellement en d^{-3} , comme attendu pour un dipôle magnétique. Les variations relatives de B_{NV} et d sont donc liées par $\delta B_{\text{NV}}/B_{\text{NV}} \approx 3\delta d/d$. Par conséquent, la variation relative de B_{NV} de 10% correspond à une amplitude d'oscillation de la pointe de ≈ 3 nm autour de la valeur moyenne de 90 nm. L'oscillation de la pointe est donc responsable d'une augmentation de \bar{d} de 3 nm par rapport à la valeur minimum de $d(t)$ de 87 nm.

L'autre conséquence de cette oscillation est l'élargissement et la chute de contraste de la raie de résonance lors de l'enregistrement d'un spectre ESR non synchronisé – c'est-à-dire lorsque tout le signal est intégré – dans un gradient de champ. Dans le cas du cœur de vortex, cet effet est peu visible, comme le montre le spectre non synchronisé de la figure 2.12b.

La faiblesse de l'amplitude d'oscillation de la pointe par rapport à la hauteur de vol moyenne indique qu'elle peut être négligée lors des comparaisons entre les images expérimentales et théoriques. Autrement dit, il nous suffira par la suite d'une part d'enregistrer des spectres ESR non synchronisés, et d'autre part d'effectuer les simulations à une distance constante d correspondant à la hauteur de vol moyenne. Notons qu'une technique permettant de déterminer d avec une précision de quelques pourcents sera décrite au chapitre 3 (cf. § 3.3.2).

Discussion

Une hauteur de vol $d \approx 100$ nm impose une limite sur la taille minimum des variations spatiales observables avec le microscope à centre NV. En effet, deux objets magnétiques ponctuels distants de l ne pourrions être résolus sur l'image de B_{NV} que si $l > d$. Cette distance correspond donc au *pouvoir séparateur* de l'instrument, qui est une mesure de sa résolution spatiale *effective*.

Néanmoins, la résolution spatiale *intrinsèque* du microscope en tant que magnétomètre reste bien inférieure à d . Une mesure de B_{NV} renseigne en effet sur le champ moyenné sur un volume de l'ordre de quelques (nm)³. Ce volume de mesure est limité par l'extension de la fonction d'onde électronique du centre NV (< 1 nm) ainsi que par la stabilité de la pointe lors de la mesure, incluant l'oscillation verticale de la pointe.

La hauteur de vol d , qui fixe le pouvoir séparateur du microscope, pourrait être réduite de diverses manières. Par exemple, l'équipe de J. Wrachtrup à l'Université de Stuttgart a montré que l'utilisation d'une pointe en forme de plateau permet d'assurer que le nanodiamant est au plus proche de la surface, résultant en une distance d aussi faible que ≈ 15 nm [99]. L'équipe de A. Yacoby à l'Université de Harvard a développé une autre approche qui consiste à fabriquer des pointes en diamant contenant un centre NV proche de la surface, conduisant à $d \approx 25$ nm [111, 112].

Cependant, diminuer d peut aussi avoir des conséquences non désirables. En particulier, dans le cas d'échantillons ferromagnétiques tels que ceux considérés dans ce chapitre, les valeurs du champ de fuite sont d'autant plus grandes que la hauteur de vol d est faible. Dans le cas du cœur de vortex par exemple, B_{NV} atteindrait ≈ 5 mT à une distance de 50 nm. Or nous avons vu au chapitre précédent (§ 1.4) que le contraste ESR diminue en présence d'un champ transverse à l'axe NV au-delà de ~ 5 mT. Par conséquent, déjà à 50 nm l'imagerie du cœur de vortex deviendrait difficile, et il serait probablement impossible de mesurer le champ du cœur pour des distances inférieures à 30 nm.

Un autre effet possible est la modification des propriétés de luminescence du centre NV du fait de la proximité de l'échantillon. Certains matériaux, les métaux en particulier, ont en effet la propriété de pouvoir éteindre, au moins partiellement, la luminescence d'un émetteur ponctuel situé à proximité (< 100 nm) en lui offrant un canal de désexcitation non radiative [113].

Pour ces deux raisons, il existe en général un compromis pour la hauteur de vol d , qui dépend de la nature de l'échantillon étudié. Dans le cas des échantillons ferromagnétiques métalliques que nous étudions ici, $d \approx 100$ nm s'avère être un bon compromis pour l'imagerie par spectroscopie ESR. Des images de meilleure résolution peuvent toutefois être obtenues en diminuant d et en utilisant la réponse optique du centre NV sous l'effet du champ transverse, même si l'information n'est alors plus quantitative. Ce régime sera discuté dans la section 2.4.

En résumé, nous avons imagé, de manière quantitative, le champ de fuite d'une source localisée de champ magnétique, en l'occurrence le cœur de vortex dans un microdisque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$. Nous allons maintenant voir qu'il est possible d'imager des distributions de champ plus complexes et délocalisées. Nous utiliserons pour cela l'imagerie iso-champ différentielle, qui permet d'obtenir rapidement et simplement un aperçu de la distribution de champ magnétique.

2.3.4 Imagerie de textures d'aimantation plus complexes

Partant du cas relativement simple d'un plot circulaire dans l'état vortex, dont le champ de fuite est dû au seul cœur de vortex, nous allons examiner trois cas de complexité croissante en ce qui concerne le champ de fuite. Les résultats sont rassemblés dans la figure 2.13, qui montre pour chaque structure l'image iso-champ expérimentale (au milieu), l'image simulée (à droite), ainsi qu'un schéma de la distribution d'aimantation (à gauche). Les simulations des images iso-champ sont obtenues en calculant d'abord la distribution de champ B_{NV} , puis en appliquant la réponse optique du centre NV en mode iso-champ décrite par l'équation (2.3), le contraste ESR étant supposé constant. Les détails de cette procédure sont donnés dans l'annexe A (cf. § A.1.3).

Microdisque de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ dans un champ externe

L'image iso-champ du disque étudié dans la section précédente est rappelée dans la figure 2.13a. La figure 2.13b montre une image de ce même disque, à la différence près qu'un champ planaire externe de 2.6 mT a été appliqué durant l'acquisition.

L'application de ce champ externe modifie clairement la distribution du champ de fuite : au lieu d'un spot localisé, une structure à deux lobes délocalisée sur tout le disque apparaît. Une telle structure à deux lobes étendus est caractéristique d'un moment magnétique planaire. Elle s'explique ici par le fait que, en réponse au champ externe, le cœur de vortex se déplace dans le plan perpendiculairement au champ appliqué de sorte à minimiser l'énergie Zeeman, résultat de l'interaction entre les moments magnétiques de la structure et le champ externe.

Par des simulations micromagnétiques avec le logiciel OOMMF, nous avons estimé qu'un champ de 2.6 mT induit un déplacement du cœur de vortex de ≈ 20 nm. Ce déplacement résulte en un moment magnétique planaire non nul, parallèle au champ appliqué, qui est délocalisé sur toute la structure. Par conséquent, au champ de fuite du

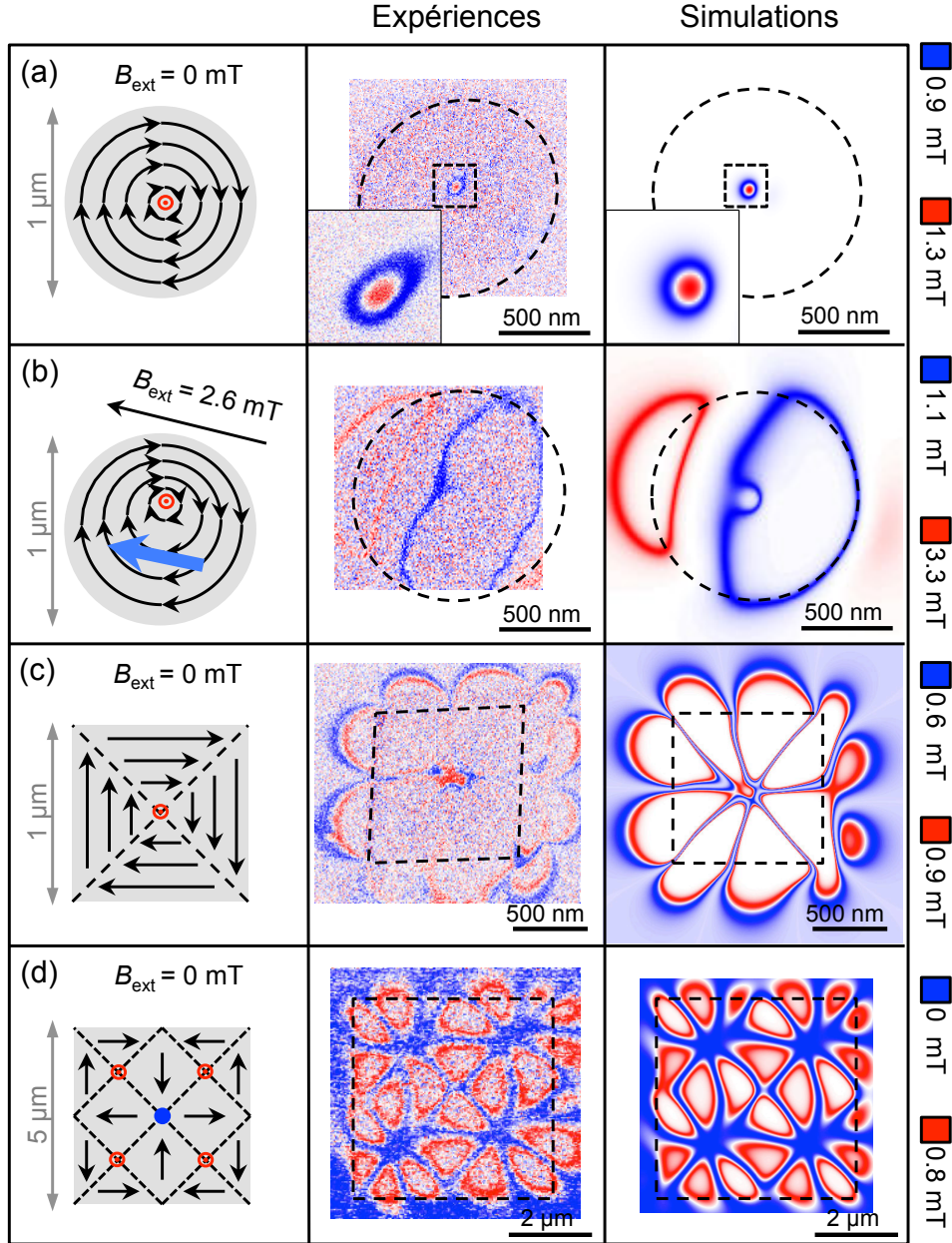


FIGURE 2.13 – (a-d) Images iso-champ différentielles expérimentales (colonne du milieu) et simulées (colonne de droite) de diverses textures d'aimantation, représentées de manière schématique dans la colonne de gauche. Les valeurs des contours iso-champ sont indiquées à droite des simulations. Les lignes pointillées délimitent les bords des structures. (a) Cas du disque dans l'état vortex, déjà étudié dans les figures 2.8 et 2.10. (b) Le même disque qu'en (a) mais soumis à un champ magnétique externe planaire de 2.6 mT. (c,d) Cas d'un carré de $1\ \mu\text{m}$ de côté dans un état vortex simple (c) et d'un carré de $5\ \mu\text{m}$ de côté dans un état à quatre vortex et un antivortex. Les conditions d'acquisition sont : $d \approx 90\ \text{nm}$ et $(\theta = 59^\circ, \phi = -15^\circ)$ en (a-c), et $d \approx 300\ \text{nm}$ et $(\theta = 65^\circ, \phi = 30^\circ)$ en (d).

cœur de vortex s'ajoute celui produit par ce moment planaire. C'est cette somme que révèle l'image de la figure 2.13b.

Cette expérience démontre la capacité du microscope à centre NV à détecter des petites

variations d'une distribution d'aimantation par rapport à une structure idéale. Dans le cas présent, le déplacement du cœur de vortex de seulement 20 nm induit un changement drastique dans l'image iso-champ. On peut ainsi envisager d'utiliser cette technique pour étudier l'influence des défauts sur les propriétés magnétiques des matériaux [37].

Microplots carrés de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$

Nous avons également étudié des structures de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de forme carrée [36]. Comme pour le disque, la distribution d'aimantation qui minimise l'énergie micromagnétique est l'état vortex : l'aimantation est parallèle au plan et tourne autour du centre, sauf au niveau du cœur de vortex où l'aimantation devient perpendiculaire au plan. Mais à la différence du disque, la structure vortex d'un plot carré produit du champ de fuite au niveau des diagonales du carré où $\nabla \cdot \mathbf{M} \neq 0$. Ceci traduit la présence de charges magnétiques le long des diagonales, qui produisent un champ de fuite s'ajoutant à celui du cœur de vortex.

Une autre manière de décrire la situation consiste à décomposer la distribution d'aimantation en quatre domaines aimantés dans le plan, comme schématisé dans la figure 2.13c. Chacun de ces domaines produit un champ de fuite suivant une structure à deux lobes, comme dans la figure 2.13b. C'est pourquoi une structure globale à huit lobes est observée dans les images iso-champ de la figure 2.13c, aussi bien dans l'expérience que dans la simulation. Le champ du cœur de vortex, au centre du plot, est également visible. Notons que les détails non triviaux de la distribution du champ de fuite B_{NV} sont liés au fait que l'axe du centre NV n'est parallèle à aucun axe de symétrie de la structure dans cette expérience. Remarquons également que, au vu de la figure 2.13c, il n'est pas trivial de déduire la distribution d'aimantation à partir de la distribution de B_{NV} . L'étape de simulation est donc importante à ce stade afin de vérifier l'hypothèse sur la distribution de l'aimantation.

Nous avons également imagé des plots carrés de dimensions plus grandes, 5 μm de côté. Si la plupart de ces plots ont montré un champ de fuite similaire à celui de la figure 2.13c, nous avons également observé des distributions de champ qui diffèrent significativement, suggérant une texture d'aimantation plus complexe que l'état vortex. Un exemple d'une telle distribution est montré dans la figure 2.13d. L'image expérimentale révèle une structure à plus de 20 lobes, organisés autour de quatre points d'ancrage formant un carré.

Étant donné cette pseudo-symétrie, nous avons émis l'hypothèse que le plot était dans une configuration à quatre vortex – les quatre points de pseudo-symétrie – répartis autour d'un antivortex situé au centre du carré. La simulation numérique est en très bon accord avec l'expérience et confirme donc cette hypothèse. Une telle configuration à quatre vortex et un antivortex est connue pour être un état métastable dans ce type de microstructure, mais n'avait jamais été observée dans un plot plein [114].

Cette expérience démontre ainsi le potentiel de la microscopie à centre NV pour l'étude de textures d'aimantation non triviales.

Imagerie vectorielle et tridimensionnelle

Comme nous l'avons mentionné à plusieurs reprises, le microscope à centre NV fournit des images de la composante B_{NV} du champ de fuite, qui est essentiellement la projection de \mathbf{B} selon l'axe de symétrie du centre NV (cf. § 1.3.2). En variant la direction de cet axe, il est donc possible de mesurer différentes composantes du champ de fuite et d'accéder ainsi à une image *vectorielle* du champ.

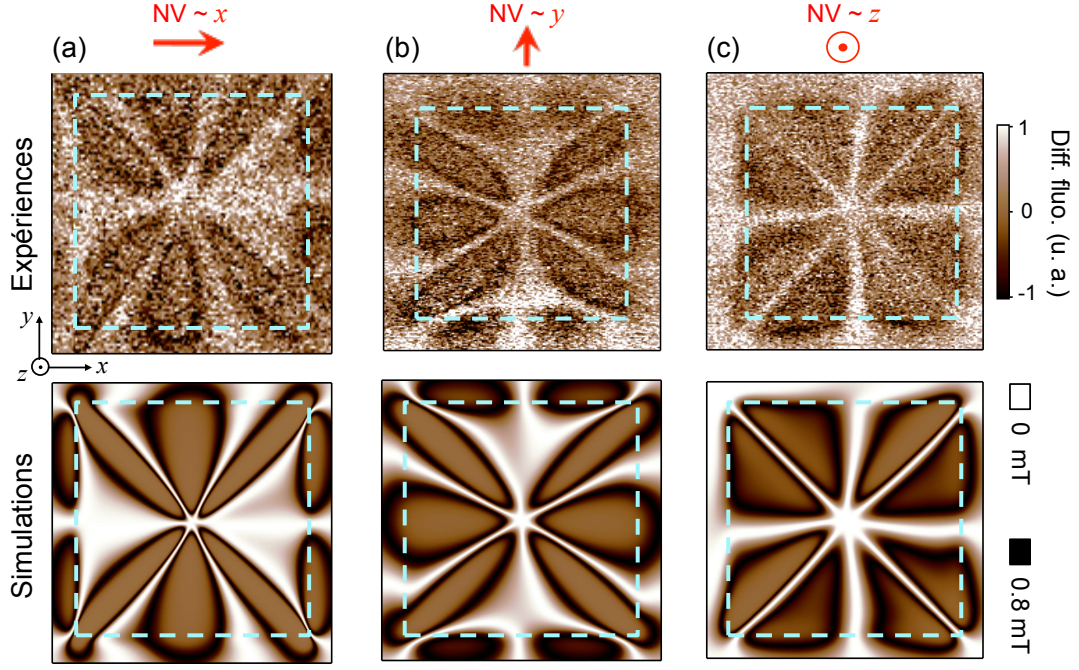


FIGURE 2.14 – (a-c) Images iso-champ différentielles (0 mT en blanc, 0.8 mT en noir) obtenues sur un plot carré de $5\ \mu\text{m}$ de côté dans un état vortex, avec différentes orientations de l'axe NV (représenté schématiquement par la flèche rouge). La simulation correspondante est montrée en-dessous de chaque image expérimentale. Les lignes pointillées délimitent les bords des structures. Les conditions d'acquisition sont : $d \approx 300\ \text{nm}$ et $(\theta = 88^\circ, \phi = 0^\circ)$ en (a), $d \approx 400\ \text{nm}$ et $(\theta = 85^\circ, \phi = 85^\circ)$ en (b), $d \approx 300\ \text{nm}$ et $(\theta = 37^\circ, \phi = -45^\circ)$ en (c), avec un temps d'intégration par pixel de 60 ms.

La figure 2.14 illustre cette capacité sur un plot carré de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ($5\ \mu\text{m}$ de côté, dans un état vortex simple) en montrant trois images iso-champ obtenues avec des axes NV proches des axes x , y et z , respectivement. Pour passer d'une orientation à l'autre, le nanodiamant est décroché de la pointe puis raccroché, ou bien une nouvelle pointe avec un nouveau nanodiamant est préparée, jusqu'à obtenir l'orientation désirée. Ce degré de liberté permet d'envisager d'adapter l'orientation du centre NV en fonction de l'application visée. Ce point s'avérera crucial au chapitre 3, où nous chercherons à avoir à centre NV dirigé suivant l'axe x autant que possible.

Un autre paramètre que la microscopie à centre NV permet de varier dans une certaine mesure est la hauteur de vol d . S'il existe une distance minimum $d = d_{\min}$ entre le centre NV et la surface de l'échantillon (cf. § 2.3.3), rien ne limite en revanche d dans les valeurs supérieures. En effet, il est possible en principe de déplacer la pointe dans tout le demi-espace au-dessus de l'échantillon.

Expérimentalement, cette troisième dimension peut être explorée de deux manières. La première est d'enregistrer, en chaque position (x, y) , une courbe d'approche $B_{\text{NV}}(d)$ en éloignant progressivement la pointe de l'échantillon. La deuxième stratégie est d'enregistrer une image dans le plan xy à une distance $d \geq d_{\min}$ choisie, en effectuant deux passages : l'un en mode contact intermittent, donc à distance $\approx d_{\min}$, puis un deuxième surélevé de $d - d_{\min}$. Cette deuxième approche est appliquée dans la figure 2.15, qui montre des images du même plot carré enregistrées à différentes hauteurs de vol entre $d = d_{\min} \approx 100\ \text{nm}$ et $d \approx 600\ \text{nm}$, en bon accord avec les simulations. Cette expérience

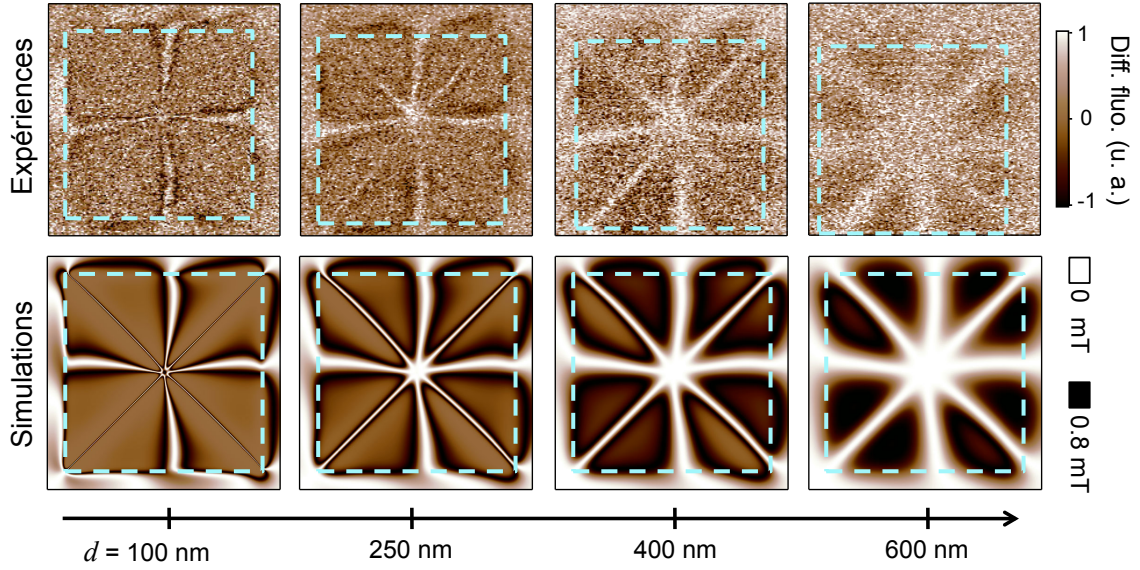


FIGURE 2.15 – Images iso-champ différentielles (0 mT en blanc, 0.8 mT en noir) obtenues sur un plot carré de $5 \mu\text{m}$ de côté dans un état vortex, avec différentes hauteurs de vol d . La simulation correspondante est montrée en-dessous de chaque image expérimentale. Les lignes pointillées délimitent les bords des structures. L’axe de projection est ($\theta = 37^\circ$, $\phi = -45^\circ$) et le temps d’intégration est de 60 ms par pixel. La hauteur de vol est contrôlée en utilisant l’AFM en mode double-passage. Le premier passage en mode contact intermittent permet d’obtenir la topographie de l’échantillon. L’image iso-champ est obtenue lors du deuxième passage, effectué en faisant suivre à la pointe le même profil de topographie mais surélevé d’une certaine distance.

illustre donc la capacité du microscope à centre NV à imager le champ magnétique de manière *tri-dimensionnelle*.

En résumé, nous avons exploré dans cette section quelques aspects du potentiel de la microscopie à centre NV pour l’étude de microstructures ferromagnétiques. Nous avons en particulier démontré la capacité du microscope à imager le champ de fuite de manière quantitative, vectorielle et tri-dimensionnelle, aussi bien pour des structures simples que pour des textures d’aimantation non triviales. Avec son volume de mesure de seulement quelques $(\text{nm})^3$ et son opération aux conditions ambiantes, le microscope à centre NV ouvre de nouvelles opportunités pour les études fondamentales en micro- et nanomagnétisme. Nous verrons en particulier au chapitre 3 qu’il permet d’adresser des questions ouvertes concernant des objets magnétiques particuliers, en l’occurrence les parois de domaine dans les couches ferromagnétiques ultraminesces.

2.4 Imagerie magnétique dans le régime des champs forts

Pour toutes les expériences décrites dans la section précédente, nous avons utilisé la spectroscopie ESR pour cartographier le champ magnétique B_{NV} , en ignorant l’influence du champ transverse à l’axe du centre NV, B_{\perp} . Or nous avons vu au chapitre 1 que la pré-

sence d'un fort champ transverse a plusieurs conséquences sur les propriétés optiques du centre NV, en particulier une réduction du contraste ESR et une extinction de l'intensité de fluorescence (cf. § 1.4). Cette section a pour objet d'explorer les limites et possibilités offertes par la microscopie à centre NV dans le régime des champs forts. Nous commencerons par examiner l'effet de B_{\perp} lors des expériences d'imagerie basées sur la spectroscopie ESR (§ 2.4.1). Puis nous démonterons une technique d'imagerie exploitant directement l'effet d'extinction de fluorescence engendré par B_{\perp} (§ 2.4.2).

2.4.1 Effet du champ transverse sur l'imagerie par spectroscopie ESR

Nous considérons à nouveau un plot carré de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ de côté $5\ \mu\text{m}$, dont la distribution d'aimantation est un état vortex. Les figures 2.16a et 2.16b montrent des images iso-champ obtenues avec une hauteur de vol $d \approx 100\ \text{nm}$. Le calcul de la distribution du champ magnétique B_{NV} à cette même distance ainsi que la simulation de l'image iso-champ sont donnés dans les figures 2.16c et 2.16d. De ces simulations, on déduit que l'image iso-champ devrait faire apparaître huit lignes radiales correspondant à $B_{\text{NV}} = 0$ (contraste clair) en partant du centre du plot : quatre lignes parallèles au bord du carré et quatre autres qui

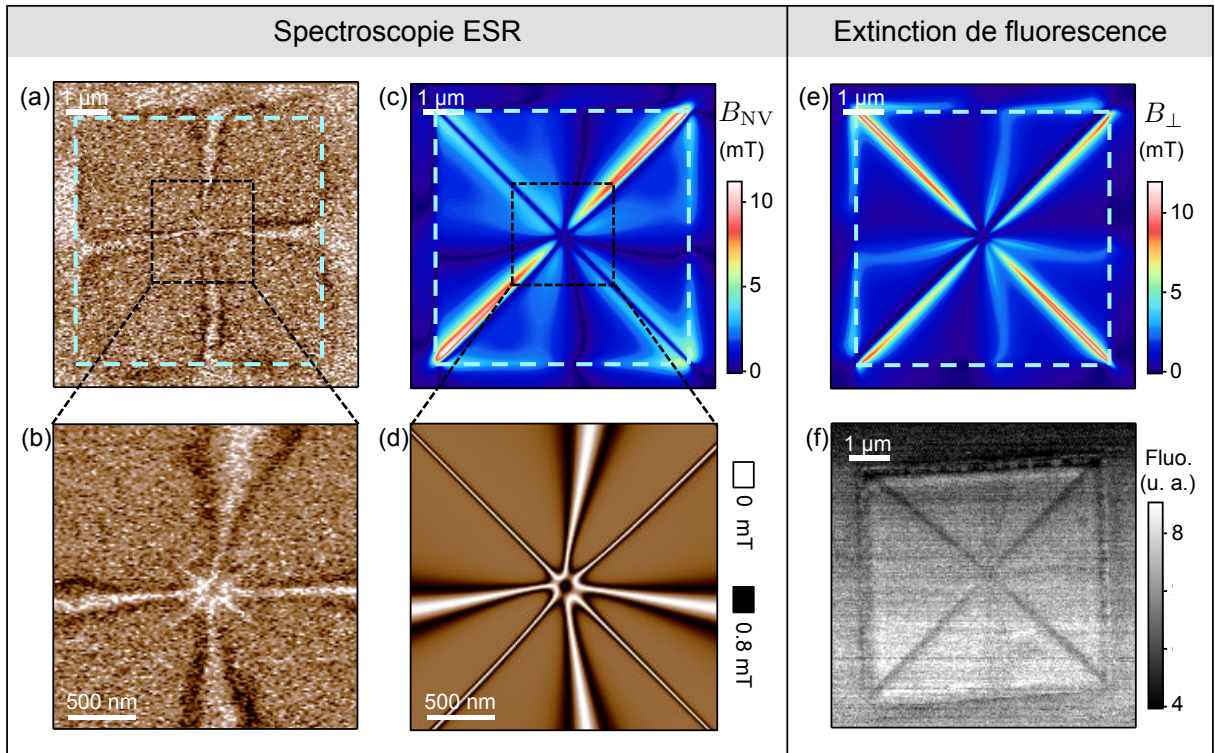


FIGURE 2.16 – (a) Image iso-champ différentielle (0 mT en blanc, 0.8 mT en noir) obtenue sur un plot carré de $5\ \mu\text{m}$ de côté dans un état vortex avec $(\theta = 37^\circ, \phi = -45^\circ)$ et $d \approx 100\ \text{nm}$. (b) Image iso-champ différentielle de la partie centrale du plot. (c) Simulation de B_{NV} dans les conditions correspondant à (a). Les lignes claires pointillées délimitent les bords du plot. (d) Simulation de l'image iso-champ correspondant à (b). (e) Simulation de B_{\perp} dans les mêmes conditions qu'en (a). (f) Image de fluorescence du centre NV obtenue sans appliquer de champ rf. La chute du signal de fluorescence le long des diagonales est directement corrélée à l'amplitude de B_{\perp} .

suivent les diagonales. Pourtant, les images expérimentales ne montrent que les quatre premières, celles des diagonales n'étant pas visibles. Ceci apparaît clairement sur l'image iso-champ enregistrée autour du cœur de vortex (figure 2.16b). On observe dans cette image que les lignes iso-champ des diagonales partent bien du cœur de vortex, mais que leur contraste s'atténue rapidement jusqu'à disparaître à une distance de ≈ 500 nm.

Cet effet est dû à la présence d'un fort champ magnétique transverse à l'axe du centre NV qui, comme expliqué dans la section 1.4, induit une diminution du contraste optique de la résonance de spin et donc du contraste des lignes iso-champ. La figure 2.16e montre la simulation de B_{\perp} , qui confirme la présence d'un champ transverse significatif le long des diagonales du carré, jusqu'à 12 mT, ce qui est suffisant pour expliquer la réduction de contraste. B_{\perp} augmente progressivement en partant du centre du plot, ce qui explique aussi pourquoi les lignes iso-champ des diagonales ne disparaissent que progressivement (figure 2.16c).

Comme discuté dans la section 1.4, la réduction du contraste en spectroscopie ESR sous l'effet d'un champ transverse s'accompagne d'une baisse du taux moyen de fluorescence. Nous avons vérifié expérimentalement cet effet d'extinction de fluorescence en mesurant la fluorescence du centre NV au-dessus du plot de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ sans appliquer de champ rf. L'image de fluorescence obtenue est montrée dans la figure 2.16f. La réduction du signal le long des diagonales, jusqu'à environ 30%, est bien corrélée à l'augmentation de B_{\perp} telle que prédite par la simulation (figure 2.16e). Cela illustre la complémentarité entre l'imagerie par spectroscopie ESR, qui permet de cartographier B_{NV} tant que B_{\perp} reste faible ($\lesssim 5$ mT) comme dans la figure 2.16a, et l'imagerie par extinction de fluorescence, qui permet de cartographier B_{\perp} lorsque $B_{\perp} \gtrsim 5$ mT comme dans la figure 2.16f.

Bien que cette technique d'imagerie par extinction de fluorescence ne donne qu'une information qualitative sur la distribution de B_{\perp} (cf. § 1.4.3), elle constitue un moyen relativement simple et rapide – typiquement 10 ms par pixel – pour cartographier le champ de fuite d'une structure ferromagnétique. Dans le cas du plot carré dans l'état vortex, l'image de la figure 2.16f montre ainsi que le champ de fuite est généré principalement au niveau des diagonales du carré, indiquant la présence de charges magnétiques au niveau des parois de domaine.

Notons que cette image est proche de celles obtenues par microscopie à force magnétique (MFM) sur des échantillons similaires [115]. Une différence notable, cependant, est que les images MFM montrent généralement des diagonales déformées par la pointe magnétique qui "tire" les parois de domaine [115]. Cela illustre un avantage important de la microscopie à centre NV sur la MFM, la première ne perturbant pas l'échantillon imagé du fait d'une pointe non magnétique. Autrement dit, le microscope à centre NV permet d'imager des structures magnétiques de manière *non invasive*.

2.4.2 Imagerie d'un réseau de bits magnétiques par extinction de fluorescence

Comme nous l'avons mentionné au chapitre 1 (cf. § 1.4.3), la technique d'imagerie par extinction de fluorescence présente un intérêt tout particulier pour la caractérisation de supports magnétiques d'enregistrement de données, en particulier les plateaux des disques durs magnétiques. Dans un disque dur, les bits d'information correspondent à des domaines magnétiques dans lesquels l'aimantation prend une direction donnée dont le sens code la valeur du bit. La taille des bits dans les disques durs de dernière génération

est d'environ $75 \times 14 \text{ (nm)}^2$ en moyenne¹. L'un des facteurs limitant la réduction de cette taille est la difficulté à caractériser et imager les bits avec les techniques usuelles telles que la MFM, du fait de la résolution spatiale requise.

La microscopie à centre NV pourrait apporter une solution à ce problème, car sa résolution spatiale peut en principe atteindre quelques nanomètres si le centre NV est placé suffisamment proche de l'échantillon. À une distance de quelques nanomètres, le champ de fuite peut atteindre $\sim 1 \text{ T}$, ce qui place le centre NV dans le régime des champs forts. Dans ce cas la technique d'imagerie par extinction de fluorescence peut être employée, révélant les bits par des bandes sombres (champ fort) séparées par des bandes brillantes (champ nul).

Pour illustrer cette idée expérimentalement, nous avons utilisé un disque dur à aimantation planaire (Maxtor 541DX 2B020H1, capacité 20 Go), comme illustré dans la figure 2.17a [34]. La couche magnétique est composée de grains de CoCr formant un film d'épaisseur $\approx 10 \text{ nm}$. La dimension des bits, $450 \times 55 \text{ (nm)}^2$, est choisie pour être compatible avec le pouvoir séparateur actuel de notre microscope, de l'ordre de 100 nm.

Nous avons d'abord imagé une portion du plateau en utilisant une excitation laser continue. Une image de fluorescence typique obtenue avec le microscope à centre NV est montrée dans la figure 2.17b. Des bandes sombres correspondant à une réduction de signal de $\approx 20\%$ sont clairement visibles, et sont organisées en pistes de largeur $\approx 450 \text{ nm}$, comme attendu. La distance entre les bandes sombres varie selon les endroits du plateau parce que les bits ont été écrits de manière aléatoire.

Dans un film à aimantation planaire, les charges magnétiques sont localisées à la jonction entre bits d'aimantations opposées. Les zones sombres dans l'image de fluorescence, pour ce centre NV dont l'axe est essentiellement parallèle à la surface, indiquent donc les zones de rotation de l'aimantation entre deux bits consécutifs. Par exemple, la coupe de la figure 2.17c montre une oscillation du signal de période $\approx 110 \text{ nm}$, ce qui signifie que les bits sont groupés deux à deux dans cette zone particulière (cf. schéma à gauche de la figure 2.17c), selon une séquence du type 00-11-00-11-00-etc.

Dans la section 1.4, nous avons également montré que la réduction du taux de fluorescence induit par un fort champ transverse est corrélée à une réduction de la durée de vie effective du niveau excité τ_{eff} . Pour vérifier cela, nous avons utilisé un laser impulsif pour pouvoir mesurer les courbes de relaxation du centre NV. La figure 2.17d montre l'exemple de telles courbes, mesurées en positionnant la pointe au-dessus d'une zone claire ou au-dessus d'une zone sombre de la figure 2.17b. En ajustant les données par une simple décroissance exponentielle, on obtient $\tau_{\text{eff}} = 18.2 \pm 0.3 \text{ ns}$ sur la zone claire et $\tau_{\text{eff}} = 15.1 \pm 0.2 \text{ ns}$ sur la zone sombre². Cette différence significative confirme que le contraste observé dans la figure 2.17b est lié à une augmentation locale du taux de relaxation non radiative, comme attendu de l'effet du champ transverse B_{\perp} qui mélange les états de spin et augmente la probabilité moyenne de relaxer non radiativement via l'état métastable (cf. § 1.4.2).

En utilisant le laser impulsif, il est aussi possible de réaliser des images de durée de vie τ_{eff} . Pour cela, une courbe de relaxation est enregistrée en chaque pixel, puis τ_{eff} est extrait par ajustement exponentiel. En intégrant le signal sous la courbe de relaxation,

1. Sur la base de la densité surfacique moyenne de 625 Gb/in^2 et de la densité moyenne de pistes de 340 kptes/in spécifiées par Seagate pour le modèle Desktop HDD.15 4TB ST4000DM000 [116].

2. Notons que la durée de vie effective du niveau excité τ_{eff} est ici supérieure aux valeurs habituellement observées pour les centres NV dans le diamant massif, où $\tau_{\text{eff}} \approx 12 \text{ ns}$. Cela s'explique par un indice de réfraction effectif plus faible dans les nanodiamants que dans le diamant massif [117].

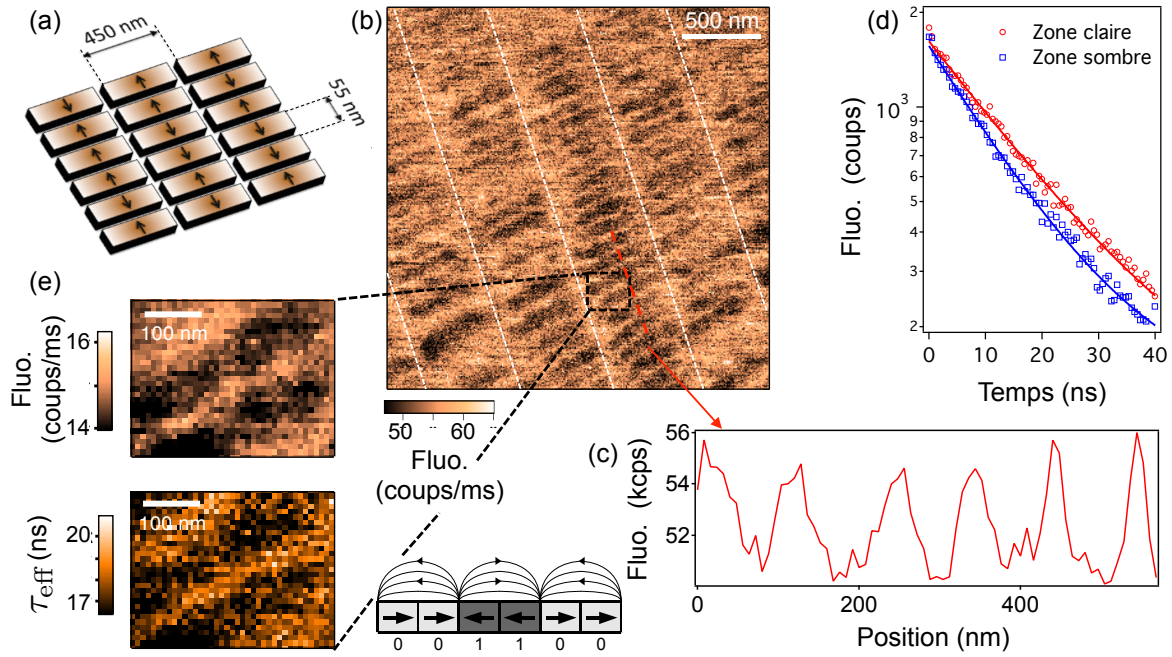


FIGURE 2.17 – (a) L'échantillon est un film granulaire magnétique issu d'un disque dur commercial, dans lequel l'information est stockée sous la forme de bits d'aimantation plane. (b) Image de fluorescence du centre NV balayé au-dessus du disque dur, obtenue avec une excitation laser continue. Le temps d'intégration est de 20 ms par pixel et la hauteur de vol est ≈ 100 nm. Les lignes pointillées blanches délimitent les pistes du disque dur. (c) Coupe prise le long de la ligne pointillée rouge dans (b). Le schéma à gauche montre la configuration magnétique correspondante probable. (d) Traces de relaxation du centre NV enregistrées avec la pointe positionnée au-dessus d'une zone de fort (courbe rouge) et faible (courbe bleue) signal de fluorescence, avec une excitation laser impulsionnelle. Les lignes continues sont les ajustements par une simple décroissance exponentielle. (e) Images de fluorescence (haut) et de durée de vie effective (bas) du centre NV, obtenues sous excitation impulsionnelle. Le temps d'intégration est de 3 s par pixel.

on peut également obtenir une image de fluorescence similaire à celle de la figure 2.17b. La figure 2.17e montre ainsi les images de fluorescence (image du haut) et de durée de vie (image du bas) obtenues en balayant le centre NV sur une petite portion de l'échantillon. La corrélation claire entre les deux images est à nouveau attribuée à l'effet du champ transverse, et montre que la mesure de τ_{eff} est une autre manière de cartographier le champ magnétique transverse.

Notons que le temps d'intégration nécessaire pour obtenir τ_{eff} avec un rapport signal-sur-bruit satisfaisant est relativement long. Par exemple, les images de la figure 2.17e ont été obtenues en intégrant 3 secondes par pixel, contre 20 ms pour l'image de fluorescence sous excitation continue de la figure 2.17b, pour un résultat peu différent. Ainsi, dans le contexte de l'imagerie magnétique, la technique d'extinction de fluorescence en régime continu s'avère plus intéressante qu'en régime impulsionnel. La mesure de τ_{eff} pourrait néanmoins trouver une application à la mesure et l'imagerie quantitative de la densité d'états électromagnétiques, comme démontré récemment par plusieurs groupes [100, 118].

2.5 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre décrit la réalisation d'un microscope à centre NV, qui consiste essentiellement en un microscope à force atomique sur la pointe duquel un nanodiamant contenant un centre NV unique est attaché. Puis nous avons exploré les potentialités de ce microscope en imageant le champ magnétique de fuite au-dessus de microplots ferromagnétiques présentant un état vortex.

Résumons ici les caractéristiques et performances actuelles de notre microscope de champ magnétique.

1. Il permet une mesure **quantitative** de la projection B_{NV} du champ selon l'axe du centre NV, dont l'orientation est mesurée indépendamment.
2. En employant des centres NV de différentes orientations, il permet une mesure **vectorielle** du champ.
3. Il opère aux **conditions ambiantes** (température ambiante et atmosphère normale).
4. La **sensibilité** de la mesure, qui dépend du temps d'intégration, vaut $\approx 10 \mu\text{T}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$.
5. La résolution spatiale intrinsèque, c'est-à-dire le **volume de détection**, est de quelques $(\text{nm})^3$.
6. Le **pouvoir séparateur** est de $\approx 100 \text{ nm}$ en moyenne, limité par la hauteur de vol minimum du centre NV.
7. Il permet une mesure **tri-dimensionnelle** du champ, dans le sens où tout le demi-espace au-dessus de l'échantillon peut être exploré.
8. La mesure est magnétiquement **non invasive** car la pointe n'est pas magnétique.

Plusieurs aspects du microscope pourraient être étendus ou améliorés. D'abord, si notre microscope fonctionne actuellement aux conditions ambiantes, il peut en principe être utilisé sous ultra-vide et à température cryogénique (4 K). En termes de performances, la sensibilité de la mesure peut être réduite potentiellement jusqu'à $\approx 100 \text{ nT}\cdot\text{Hz}^{-1/2}$, en optimisant la qualité du diamant contenant le centre NV et en utilisant des protocoles de mesure plus avancés [66, 74, 111]. Enfin, le pouvoir séparateur du microscope, limité par la hauteur de vol minimum du centre NV, peut être réduit potentiellement jusqu'à $\approx 10 \text{ nm}$, en optimisant la procédure d'accrochage du nanodiamant ou en fabriquant une pointe directement à partir d'un diamant massif contenant un centre NV implanté à proximité de la surface [99, 112].

Avec ces évolutions, la microscopie à centre NV pourrait alors être utilisée pour étudier des échantillons ou phénomènes impliquant des très faibles densités de spin. Citons par exemple l'accumulation de spin par l'effet Hall de spin dans les métaux [119], le couplage magnéto-électrique dans les films minces multiferroïques [120], ou encore les courants de spin ou de charge dans le graphène ou les matériaux exotiques [3, 4].

Toutefois, les performances actuelles de notre microscope sont déjà largement suffisantes pour de nombreuses applications, ce que nous avons illustré notamment en imageant, de manière quantitative, le champ de fuite généré par le cœur d'un vortex magnétique, qui est un des objets emblématiques du micromagnétisme. Il se trouve même que la hauteur de vol typique de 100 nm constitue une distance idéale pour étudier des

échantillons ferromagnétiques, pour lesquels une distance plus faible ferait entrer le centre NV dans le régime des champs forts, où la spectroscopie ESR n'est plus utilisable.

Dans le chapitre qui suit, nous allons mettre à profit les possibilités sans précédent offertes par notre microscope à centre NV pour étudier des objets magnétiques qui font l'objet de nombreux travaux de recherche actuellement, et pour lesquels des questions fondamentales se posent : les parois de domaine dans les couches ferromagnétiques ultra-minces.

Application à l'étude de parois de domaine dans des couches ferromagnétiques ultraminces

Sommaire

3.1	Introduction	79
3.2	Éléments de la théorie micromagnétique des parois de domaine	82
3.2.1	Structure interne d'une paroi de domaine	82
3.2.2	Déplacement d'une paroi de domaine par un courant électrique	86
3.2.3	Rôle de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya	87
3.3	Détermination directe de la nature d'une paroi de domaine	90
3.3.1	Principe de la méthode	91
3.3.2	Procédure de calibration	95
3.3.3	Résultats sur des échantillons de Ta CoFeB(1 nm) MgO	99
3.3.4	Résultats sur un échantillon de Pt Co(0.6 nm) AlO _x	107
3.4	Étude de la dynamique d'une paroi de domaine sous l'effet d'un chauffage local	110
3.4.1	Reconstruction du profil de position d'une paroi	112
3.4.2	Observation et analyse des sauts d'une paroi entre deux sites de piégeage	114
3.4.3	Modèle de la dynamique de paroi sous l'effet du laser	119
3.4.4	Application à la cartographie des sites de piégeage	123
3.5	Conclusion	125

3.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons utilisé le microscope à centre NV pour imager le champ de fuite de microplots de Ni₈₀Fe₂₀ de formes circulaire et carrée. Les mesures sont quantitatives, vectorielles, non invasives, et la hauteur de vol pour ces expériences est de l'ordre de 100 nm. Les prédictions théoriques du champ de fuite, pour ces structures bien connues en micromagnétisme, sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Dans ce chapitre, nous allons un pas plus loin en nous intéressant à des objets magnétiques moins connus, en l'occurrence les parois de domaine dans les couches ferromagnétiques ultraminces à anisotropie perpendiculaire.

Les systèmes auxquels nous allons nous intéresser sont des hétérostructures constituées d'une couche ferromagnétique "ultramince" – quelques plans atomiques d'un métal

de transition – comprise entre deux matériaux non magnétiques, généralement un métal et un oxyde ou deux métaux (figure 3.1a). Il a été reconnu dès les années 1980 que certaines combinaisons de matériaux donnent lieu à une anisotropie magnétique perpendiculaire [122–124], c'est-à-dire que l'aimantation de la couche magnétique est perpendiculaire au plan des couches à l'équilibre, alors que l'anisotropie de forme favorise normalement une aimantation dans le plan. Cette anisotropie perpendiculaire, qui a pour origine une hybridation électronique aux interfaces [125–127], est présente notamment dans les systèmes

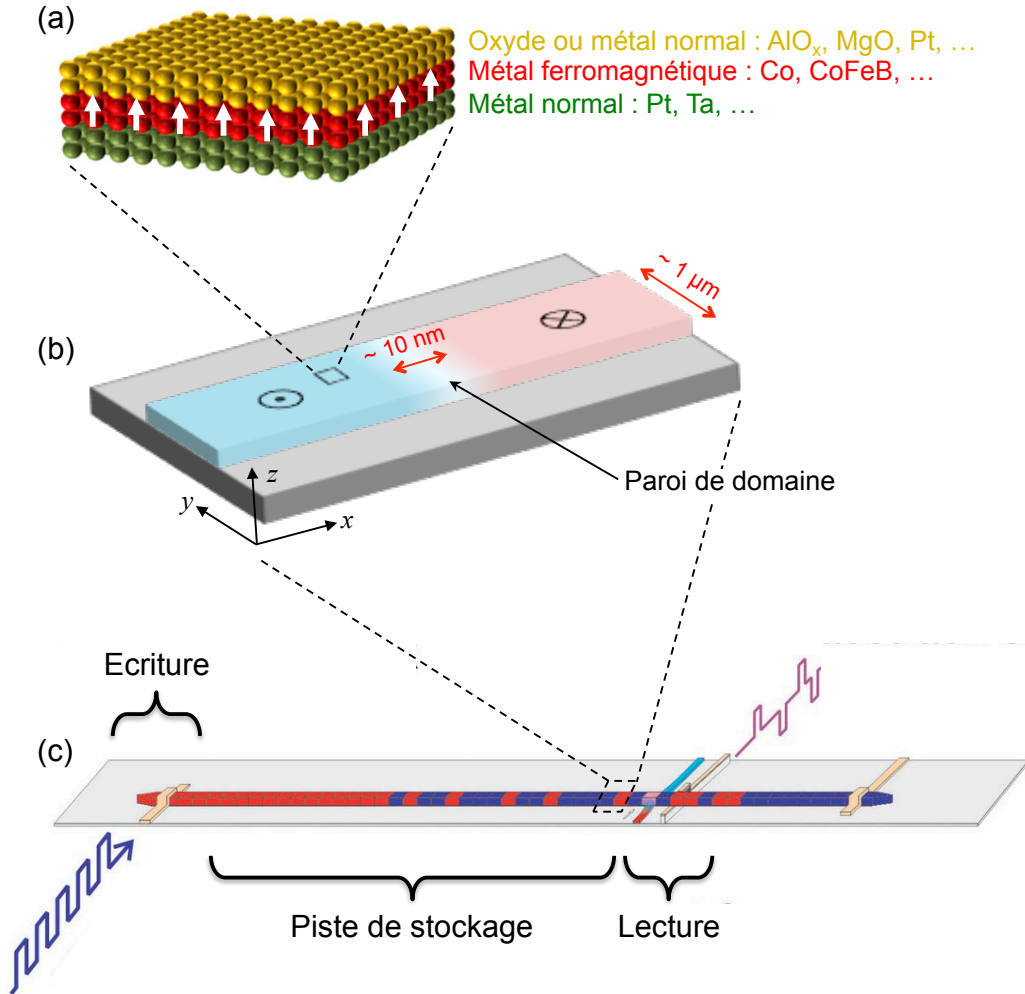


FIGURE 3.1 – (a) Représentation atomique d'un système tri-couche tel que ceux considérés dans ce chapitre. La couche magnétique est comprise entre deux couches non magnétiques. L'aimantation de la couche magnétique, perpendiculaire au plan des couches, est symbolisée par les flèches blanches. (b) Représentation schématique d'une paroi de domaine dans une piste magnétique à aimantation perpendiculaire. (c) Représentation schématique du concept de "magnetic domain wall racetrack memory" proposé par Parkin et collègues [121]. Il s'agit d'une mémoire non volatile dans laquelle l'information est codée sous la forme de domaines dans une piste magnétique. L'injection d'un courant électrique dans la piste permet de déplacer les domaines magnétiques vers les zones de lecture et d'écriture. Ces dernières utilisent également des courants électriques pour lire et écrire l'information. Figure adaptée de la référence [121].

tri-couches Ta|CoFeB|MgO [128–130] et Pt|Co|AlO_x [131–133]. Ce sont ces systèmes de matériaux que nous étudierons expérimentalement dans ce chapitre.

Motivations

Dans une couche à aimantation perpendiculaire, une paroi de domaine correspond à une zone de transition entre un domaine où l’aimantation pointe vers le haut, et un autre où elle pointe vers le bas (figure 3.1b). L’étude des parois de domaine dans les couches ultraminces à aimantation perpendiculaire a connu un essor important au cours des dernières années, principalement pour deux raisons. La première raison est fondamentale : les effets d’interface devenant prédominant avec de telles épaisseurs ($\lesssim 1$ nm), de nouveaux phénomènes apparaissent quant au comportement de ces parois de domaine, notamment en présence d’un courant électrique (effet Rashba, couple induit par l’effet Hall de spin dans les couches adjacentes, interaction Dzyaloshinskii-Moriya, etc.), résultant en une physique riche qui reste encore largement inexplorée.

La deuxième raison est technologique : les domaines magnétiques dans des couches ultraminces, et plus particulièrement dans des pistes de largeur micrométrique (figure 3.1b), pourraient permettre la réalisation de dispositifs spintroniques à faible consommation énergétique pour la logique [134] ou le stockage de l’information [135].

Un exemple prometteur d’application technologique est le concept de “magnetic domain wall racetrack memory” proposé par Parkin et collègues à IBM en 2008 [121] (figure 3.1c). Par rapport à un disque dur magnétique, dans lequel une tête de lecture/écriture est déplacée *mécaniquement* pour accéder à l’ensemble des bits magnétiques, l’idée de la “racetrack memory” est de déplacer les bits eux-mêmes par rapport aux dispositifs de lecture/écriture, en utilisant pour cela des *courants électriques*. La mémoire consisterait alors en un réseau de pistes magnétiques, dans lesquelles des courants électriques sont utilisés non seulement pour déplacer les bits magnétiques le long des pistes, mais aussi pour lire et écrire l’information.

Comparé à un disque dur magnétique conventionnel, ce concept présente l’avantage de s’affranchir des pièces mécaniques, garantissant une meilleure robustesse, tout en promettant une plus grande rapidité d’accès aux données. Ce dernier point est lié à la capacité à déplacer, à l’aide de courants électriques, les parois de domaine à des vitesses pouvant atteindre plusieurs centaines de mètres par seconde.

Parmi les systèmes magnétiques envisagés pour réaliser une “racetrack memory”, les couches ferromagnétiques ultraminces semblent particulièrement prometteuses. En effet, en comparaison à des couches plus épaisses avec une aimantation planaire [136], les couches ultraminces offrent des performances similaires en termes de rapidité et densité de stockage, voire supérieures [132, 137], pour une consommation d’énergie bien moindre du fait de la plus faible épaisseur des couches.

Cependant, certains phénomènes observés dans les couches ultraminces restent mal compris à l’heure actuelle. En particulier, des vitesses de propagation anormalement élevées ont été observées dans certains matériaux [132], qui ne peuvent être expliqués par les mécanismes agissant habituellement dans les couches plus épaisses. L’un des obstacles dans la compréhension de la dynamique des parois dans les couches ultraminces réside dans la méconnaissance de la structure interne de ces parois, qui résulte de la difficulté à les imager par les techniques conventionnelles à haute résolution spatiale.

En effet, les techniques basées sur la microscopie électronique [138] ou à rayons X [139] butent généralement sur un manque de signal dû au faible volume d’interaction dans les films d’épaisseur sub-nanométrique, tandis que la microscopie à force magnétique n’est

pas adaptée car les parois de domaine sont très sensibles aux perturbations magnétiques. D’autres techniques, telles que la microscopie à effet tunnel polarisé en spin [140] et la microscopie électronique à basse énergie polarisée en spin [141], peuvent fournir une résolution suffisante pour imager la structure interne des parois, mais sont limitées à des systèmes modèles du fait des contraintes expérimentales.

En fait, la technique la plus utilisée actuellement pour étudier les films ultraminces, et qui est applicable sur la plupart des échantillons, est la microscopie magnéto-optique à effet Kerr, qui offre une résolution spatiale limitée par la diffraction de la lumière, soit ≈ 500 nm [132]. Si cette technique permet d’étudier la dynamique des parois de domaine, sa résolution spatiale est insuffisante pour observer leur structure interne, ou pour étudier les effets de piégeage à l’échelle sub-micrométrique. C’est pourquoi une technique d’imagerie aussi versatile que la microscopie Kerr, mais offrant une meilleure résolution spatiale, est hautement désirable.

Dans ce chapitre, nous allons montrer que la microscopie à centre NV permet effectivement d’imager les parois de domaine dans les couches ultraminces, et ce avec une résolution spatiale bien meilleure que celle de la microscopie à effet Kerr. De plus, nous verrons qu’elle donne accès à des informations nouvelles, liées à la structure interne des parois ou la répartition spatiale des sites de piégeage pour ces parois, deux aspects importants dans le cadre du développement de la “racetrack memory”.

Ce chapitre est divisé en trois sections. Dans un premier temps, nous donnerons quelques éléments théoriques permettant de comprendre les enjeux de l’étude des parois de domaine, en particulier la nécessité de connaître la structure interne et la nature des parois (§ 3.2). Nous décrirons ensuite une méthode pour déterminer directement la nature d’une paroi avec le microscope à centre NV (§ 3.3). Enfin, nous étudierons, à l’aide de ce microscope, la dynamique d’une paroi sous l’effet d’un chauffage local, ce qui nous permettra d’explorer le piégeage de la paroi par les défauts (§ 3.4).

3.2 Éléments de la théorie micromagnétique des parois de domaine

Cette section a pour objet d’introduire les éléments théoriques qui permettront de comprendre le reste du chapitre. Nous commencerons d’abord par rappeler les bases de la théorie micromagnétique qui mènent à la prédiction de la structure interne des parois de domaine dans les couches à aimantation perpendiculaire, selon le modèle le plus simple (§ 3.2.1). Puis nous expliquerons en quoi certains résultats expérimentaux récents sont en contradiction avec ce modèle (§ 3.2.2). Nous verrons alors que la prise en compte d’une interaction d’échange anisotrope modifiant la nature des parois permet de reproduire ces résultats (§ 3.2.3). L’existence de cette interaction, d’origine interfaciale, et ses conséquences font actuellement l’objet d’un important débat académique. Notre méthode pour déterminer la nature des parois, décrite dans la section 3.3, a pour but principal de confirmer ou infirmer l’existence d’une telle interaction aux interfaces.

3.2.1 Structure interne d’une paroi de domaine

Considérons une piste magnétique d’épaisseur t et de largeur $w \gg t$, dont le grand axe est parallèle à x (figure 3.2a). On suppose que la piste contient une paroi de domaine droite

et parallèle à y , de largeur $\Delta_p \ll w$ où Δ_p sera définie plus bas. De plus, l'aimantation est supposée uniforme à travers l'épaisseur de la couche, c'est-à-dire selon z . Dans la limite où $w \rightarrow +\infty$, on est ainsi ramené à un problème à une dimension, où les variables ne dépendent que de l'abscisse x . On introduit le vecteur d'aimantation réduite $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M_s$, où M_s est l'aimantation à saturation du matériau ferromagnétique. On notera $\theta_m(x)$ l'angle polaire, à la position x , formé entre le vecteur \mathbf{m} et l'axe z (figure 3.2a). L'angle azimutal, noté ψ_m , est supposé indépendant de la position x , ce qui sera justifié plus bas.

Dans un film à anisotropie magnétique perpendiculaire, la structure interne d'une paroi, par exemple une paroi $\uparrow\downarrow$, est la manière dont l'aimantation tourne dans l'espace de $\mathbf{m}(x \rightarrow -\infty) = +\hat{\mathbf{z}}$ à $\mathbf{m}(x \rightarrow +\infty) = -\hat{\mathbf{z}}$, $\hat{\mathbf{z}}$ étant le vecteur unitaire selon la direction z . Lorsque $\psi_m = \pm\pi/2$, \mathbf{m} tourne de manière hélicoïdale : on parle alors de paroi de Bloch (figure 3.2b, haut). Lorsque $\psi_m = 0$ ou π , \mathbf{m} tourne de manière cycloïdale : on parle de paroi de Néel (figure 3.2b, bas). Les deux valeurs de ψ_m , $\pm\pi/2$ pour une paroi de Bloch et 0 ou π pour une paroi de Néel, correspondent aux deux chiralités possibles, chiralité gauche et chiralité droite. Nous allons voir que ces différents types de paroi ne sont pas équivalents d'un point de vue énergétique.

Dans une description micromagnétique, la densité totale d'énergie de la couche ferromagnétique (énergie par unité de volume) contient en général les quatre termes suivants [104] :

$$\varepsilon_{\text{tot}} = \varepsilon_{\text{ech}} + \varepsilon_{\text{ani}} + \varepsilon_{\text{demag}} + \varepsilon_{\text{Zeeman}} . \quad (3.1)$$

Le terme $\varepsilon_{\text{ech}} = A(\nabla\mathbf{m})^2$ est l'énergie d'échange, de constante A , qui favorise une aimantation uniforme. Le terme ε_{ani} correspond à l'anisotropie magnétocristalline, en incluant les effets d'interface. Dans le cas d'une couche à aimantation perpendiculaire, elle prend la forme $\varepsilon_{\text{ani}} = K_{\text{mc}} \sin^2 \theta_m$ avec $K_{\text{mc}} > 0$. L'énergie démagnétisante s'écrit $\varepsilon_{\text{demag}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_d / 2$, avec \mathbf{H}_d le champ démagnétisant. Enfin, le dernier terme décrit l'énergie Zeeman $\varepsilon_{\text{Zeeman}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}$, où \mathbf{H} est le champ magnétique externe.

L'énergie totale de la couche magnétique est simplement l'intégrale

$$E_{\text{tot}} = \int_{\text{vol}} d^3\mathbf{r} \, \varepsilon_{\text{tot}}(\mathbf{r}) . \quad (3.2)$$

Il est possible de montrer que pour une couche contenant une paroi centrée en $x = 0$, E_{tot} est minimisée pour une fonction $\theta_m(x)$ de la forme [104]

$$\theta_m(x) = 2 \tan^{-1} \left[\exp \left(\frac{x}{\Delta_p} \right) \right] , \quad (3.3)$$

indépendamment de l'angle ψ_m . Dans cette expression, on a défini $\Delta_p = \sqrt{A/K_{\text{eff}}}$, qui est le paramètre qui caractérise la largeur de la paroi. La grandeur $K_{\text{eff}} = K_{\text{mc}} - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ est la constante d'anisotropie effective, correspondant à l'anisotropie magnétocristalline K_{mc} réduite du terme d'énergie démagnétisante associé à la composante M_z , lequel favorise normalement une aimantation planaire.

À partir de l'expression (3.3), on obtient la composante perpendiculaire de l'aimantation

$$\begin{aligned} m_z(x) &= \cos[\theta(x)] \\ &= -\tanh \left(\frac{x}{\Delta_p} \right) . \end{aligned} \quad (3.4)$$

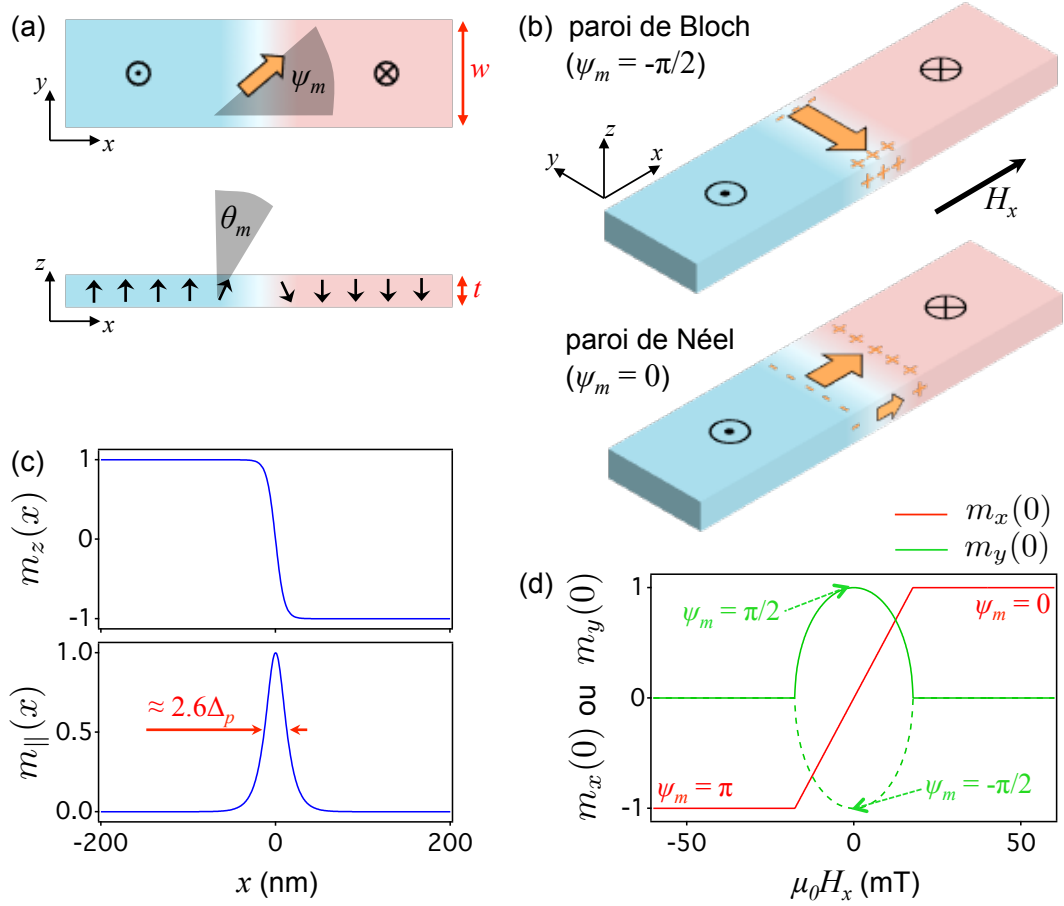


FIGURE 3.2 – (a) Vues de dessus (schéma du haut) et de côté (schéma du bas) d'une paroi de domaine dans une piste à aimantation perpendiculaire. Le vecteur d'aimantation réduite \mathbf{m} est caractérisé par les angles sphériques $\theta_m(x)$ et ψ_m , ce dernier étant indépendant de x . (b) La paroi de Bloch (resp. paroi de Néel) correspond aux cas particuliers $\psi_m = \pm\pi/2$ (resp. $\psi_m = 0$ ou π), comme illustré sur le schéma du haut (resp. du bas). (c) Composantes perpendiculaire $m_z(x)$ (graphe du haut) et planaire $m_{||}(x)$ (graphe du bas) d'une paroi centrée en $x = 0$, calculées à partir des équations (3.4) et (3.5). (d) Composantes planaires $m_x = m_{||} \cos \psi_m$ et $m_y = m_{||} \sin \psi_m$ au centre de la paroi ($x = 0$), à l'équilibre, en fonction de l'amplitude du champ H_x , calculées à partir de l'équation (3.8). Les deux branches de m_y (lignes vertes continue et pointillée) correspondent aux deux signes possibles, qui sont dégénérés tant que $H_y = 0$. Pour (c) et (d), les paramètres utilisés sont : $t = 1$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 10$ nm. La valeur critique pour stabiliser une paroi de Néel pure vaut $\mu_0 H_{c,1} \approx 18$ mT.

De plus, l'aimantation planaire $\mathbf{m}_{||} = (m_x, m_y)$ a pour amplitude

$$\begin{aligned}
 m_{||}(x) &= \sqrt{m_x^2(x) + m_y^2(x)} \\
 &= |\sin[\theta(x)]| \\
 &= \frac{1}{\cosh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right)}.
 \end{aligned} \tag{3.5}$$

Ces deux composantes sont représentées en fonction de x dans la figure 3.2c pour des

paramètres typiques de nos échantillons. Le profil $\theta_m(x)$ étant connu, il reste maintenant à déterminer l'angle

$$\psi_m = \tan^{-1} \left[\frac{m_y(x)}{m_x(x)} \right] , \quad (3.6)$$

qui est indépendant de la position x . C'est cet angle qui définit la “nature” de la paroi, les cas extrêmes étant la paroi de Bloch ($\psi_m = \pm\pi/2$) et la paroi de Néel ($\psi_m = 0$ ou π).

Pour une paroi placée dans un champ magnétique planaire, de composantes cartésiennes $\mathbf{H} = (H_x, H_y, 0)$, la densité surfacique d'énergie de la paroi s'exprime selon [142]

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{tot}} &= \frac{E_{\text{tot}}(\text{avec paroi}) - E_{\text{tot}}(\text{sans paroi})}{wt} \\ &= \sigma_0 + \sigma_d \cos^2 \psi_m - (\sigma_{H_x} \cos \psi_m + \sigma_{H_y} \sin \psi_m) , \end{aligned} \quad (3.7)$$

où $\sigma_0 = 4\sqrt{AK_{\text{eff}}}$, $\sigma_d \approx \mu_0 M_s^2 t \ln 2 / \pi$ est l'énergie démagnétisante associée à la composante M_x [143], et $\sigma_{H_i} = \pi \Delta_p M_s \mu_0 H_i$ est l'énergie Zeeman associée à la composante H_i ($i = x$ ou y).

À partir de l'expression (3.7), on peut déterminer, en fonction de H_x et H_y , l'angle ψ_m qui minimise l'énergie de la paroi. Considérons tout d'abord le cas où aucun champ externe n'est appliqué ($\sigma_{H_x} = \sigma_{H_y} = 0$). L'énergie minimum $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_0$ est obtenue pour une paroi de Bloch ($\psi_m = \pm\pi/2$). À l'inverse, l'énergie est maximum pour une paroi de Néel ($\psi_m = 0$ ou π) et vaut $\sigma_{\text{tot}} = \sigma_0 + \sigma_d$.

Le coût supplémentaire σ_d de la paroi de Néel vient du champ démagnétisant selon x , produit par les charges magnétiques situées de part et d'autre du centre de la paroi, c'est-à-dire en $x \sim \pm\Delta_p$ dans une vision idéalisée (figure 3.2b). Pour la paroi de Bloch, le champ démagnétisant selon y s'annule pour une paroi infiniment longue, car les charges magnétiques sont repoussées en $y = \pm w/2 \rightarrow \pm\infty$. En champ nul, la configuration stable est donc la paroi de Bloch, les deux chiralités étant dégénérées. Ceci reste valable pour une paroi confinée dans une piste de largeur w finie tant que $w \gg \Delta_p$ [144], ce qui sera toujours le cas dans nos expériences où $\Delta_p \sim 5 - 30$ nm et $w \sim 500 - 1500$ nm.

De manière évidente, l'application d'un champ externe permet de stabiliser une paroi avec n'importe quel angle ψ_m . En effet, pour un champ suffisamment fort, typiquement $\gg 10$ mT, on peut négliger σ_d dans l'équation (3.7) et l'aimantation planaire de la paroi s'aligne alors avec le champ, soit $\psi_m = \tan^{-1}(H_y/H_x)$.

Le régime intermédiaire mérite discussion. Considérons l'effet d'un champ appliqué uniquement selon x . D'après l'équation (3.7), l'angle d'équilibre vérifie alors

$$\begin{aligned} \cos \psi_m &= \frac{\sigma_{H_x}}{2\sigma_d} \\ &\approx \frac{\pi^2 \Delta_p \mu_0 H_x}{2\mu_0 M_s t \ln 2} , \end{aligned} \quad (3.8)$$

qui est valable tant que $\left| \frac{\sigma_{H_x}}{2\sigma_d} \right| < 1$. Lorsque $|H_x| > H_{c,1}$ où l'on définit le champ critique

$$H_{c,1} = \frac{2\mu_0 M_s t \ln 2}{\pi^2 \Delta_p \mu_0} , \quad (3.9)$$

la paroi est complètement stabilisée dans une configuration Néel, avec $\psi_m = 0$ ou π selon le signe de H_x . En appliquant un champ H_x , on a donc une transition continue entre la paroi de Bloch et la paroi de Néel, avec une valeur critique $H_{c,1} \sim 20$ mT au-delà de laquelle la paroi est purement de type Néel. Cette transition est visible dans la figure 3.2d, qui montre les composantes planaires $m_x = m_{\parallel} \cos \psi_m$ et $m_y = m_{\parallel} \sin \psi_m$ au centre de la paroi en fonction de H_x .

3.2.2 Déplacement d’une paroi de domaine par un courant électrique

On sait depuis plusieurs décennies qu’un courant électrique circulant dans une piste ferromagnétique est capable de déplacer des parois de domaines [145, 146]. Le cadre général pour décrire la dynamique de l’aimantation \mathbf{m} sous l’effet d’un courant repose sur l’équation Landau-Lifshitz-Gilbert-Slonczewski (LLGS)

$$\frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} = -\gamma_e \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + \boldsymbol{\tau} , \quad (3.10)$$

où $\gamma_e = g\mu_B/\hbar$ est le facteur gyromagnétique de l’électron, \mathbf{H}_{eff} est un champ magnétique effectif qui inclut le champ externe ainsi que les contributions de l’interaction d’échange, du champ démagnétisant et de l’anisotropie, α est la constant d’amortissement de Gilbert, et $\boldsymbol{\tau}$ désigne les couples induit par le courant. Dans cette équation, le premier terme du membre de droite mène à la précession de \mathbf{m} autour de la direction du champ effectif \mathbf{H}_{eff} , tandis que le second terme mène à la relaxation de \mathbf{m} vers ce champ, autrement dit vers sa position d’équilibre.

Lorsqu’un électron de conduction passe d’un domaine magnétique à un autre, sa direction de spin est modifiée à cause de l’interaction d’échange qui force le spin de l’électron à s’aligner avec la direction de l’aimantation du nouveau domaine. Par conservation du moment cinétique, le changement de direction du spin de l’électron entrant dans le nouveau domaine donne lieu à un petit changement dans la direction d’aimantation de ce domaine, ce qui revient à dire que cet électron exerce un couple sur l’aimantation. Ce couple de “transfert de spin”, noté $\boldsymbol{\tau} = \boldsymbol{\tau}_{\text{TS}}$, a été au centre de la recherche en spintronique durant les quinze dernières années [146].

Cependant, alors que ce phénomène est relativement bien compris dans la plupart des systèmes ferromagnétiques, des effets “anormaux” ont été observés ces dernières années dans certains systèmes de couches ultraminces à aimantation perpendiculaire. Par exemple, il a été observé dans Pt|Co|AlO_x [132, 147], Pt|CoFe|MgO [148] ou encore Pt|Co|Ni|Co|Pt [149], que les parois de domaine se déplacent à l’encontre du flux d’électrons, contrairement au sens prédit par le couple de transfert de spin standard. De plus, les vitesses de propagation atteignent jusqu’à 400 m·s⁻¹ [132, 149], ce qui est également incompatible avec la théorie standard du couple de transfert de spin [150].

Pour expliquer ces observations, il a été proposé que d’autres types de couples sont présents, qui trouvent leur origine dans l’interaction spin-orbite au sein de la couche magnétique mais aussi potentiellement dans les couches adjacentes [151]. Ces “couples spin-orbite” ajoutent une contribution $\boldsymbol{\tau}_{\text{SO}}$ au couple total qui intervient dans l’équation (3.10), qui s’écrit alors comme la somme $\boldsymbol{\tau} = \boldsymbol{\tau}_{\text{TS}} + \boldsymbol{\tau}_{\text{SO}}$.

Toutefois, il n’y a pas encore de consensus à l’heure actuelle concernant le ou les mécanismes qui donnent lieu à ces couples spin-orbite. L’un des modèles proposés, qui a fait l’objet de nombreuses investigations à la fois théoriques [150, 152, 153] et expérimentales [148, 149, 154], est le suivant.

1. Il est conjecturé qu’une interaction d’échange anisotrope, connue sous le nom d’interaction Dzyaloshinskii-Moriya (DM), est présente à l’interface entre la couche ferromagnétique et la couche métallique inférieure, ce qui stabiliserait une paroi de Néel avec une chiralité particulière.
2. Le flux d’électrons circule principalement dans la couche métallique inférieure, ce qui donne lieu, du fait d’un fort couplage spin-orbite dans les métaux lourds, à un courant de spin dans la direction verticale via l’effet Hall de spin.

3. Ce courant de spin est injecté dans la couche ferromagnétique et induit alors un couple τ_{SO} capable de déplacer la paroi de Néel.

L'une des hypothèses importantes de ce mécanisme est l'existence d'une interaction DM interfaciale. Son rôle principal ici est de stabiliser des parois de Néel au détriment des parois de Bloch [152]. En effet, le couple spin-orbite lié au courant de spin vertical n'a d'effet que sur la composante m_x de l'aimantation, et ne peut donc expliquer le déplacement que d'une paroi de type Néel [155]. Ce scénario permet d'expliquer le sens "anormal" de déplacement des parois sous l'effet d'un courant électrique, ainsi que leur vitesse très rapide [150, 152]. Cependant, la nature exacte du ou des couples spin-orbite en jeu reste sujette à débat. En effet, certaines observations expérimentales suggèrent la présence d'autres contributions, que le seul courant de spin vertical généré par l'effet Hall de spin ne peuvent expliquer [156, 157]. Sur le plan théorique, il a été proposé notamment que des effets de transport diffusif, ou encore la présence d'une interaction Rashba, pourraient également jouer un rôle majeur [153].

L'étude expérimentale des couples spin-orbite est rendu difficile par le fait que leur action sur la propagation des parois est fortement liée à la structure interne de la paroi. Or celle-ci est inconnue a priori, et dépend de l'existence éventuelle d'interactions non triviales aux interfaces, telles que l'interaction DM. Ainsi, la nature de la paroi – qui peut être de type Bloch, Néel ou même dans un cas intermédiaire – est au cœur du problème du déplacement des parois sous l'effet d'un courant. C'est pourquoi une méthode permettant de déterminer *directement* la nature de la paroi serait un outil précieux pour progresser dans la compréhension des phénomènes de déplacement de parois sous courant. De plus, une telle méthode fournirait un moyen d'explorer l'origine de cette interaction DM et plus généralement des effets d'interface dans les couches ultraminces. Nous allons maintenant expliciter l'effet de l'interaction DM sur la nature d'une paroi (§ 3.2.3), puis nous introduirons une méthode, basée sur le microscope à centre NV, qui permet de déduire cette nature (§ 3.3).

3.2.3 Rôle de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya

L'interaction DM est une interaction d'échange antisymétrique dont la forme générale peut s'écrire, dans une description atomique [158],

$$E_{\text{DM}} = \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{d}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \quad (3.11)$$

où \mathbf{d}_{ij} est le vecteur de l'interaction DM pour la liaison atomique ij , \mathbf{S}_i est le vecteur unitaire du moment de spin de l'atome i , et la somme est effectuée sur les paires de plus proches voisins $\langle i, j \rangle$. Comme cette interaction s'annule lorsqu'il y a un centre d'inversion entre les sites i et j , elle n'est susceptible d'être présente que lorsque la symétrie locale est suffisamment basse. C'est notamment le cas des films ultraminces sans symétrie d'inversion – par exemple une structure Pt|Co|AlO_x – où l'interaction DM résulte alors de l'interaction des atomes magnétiques (Co) avec les atomes de la couche métallique (Pt) subissant un fort couplage spin-orbite [159] (figure 3.3a). Il s'agit donc ici d'une interaction *interfaciale*, qui n'a d'influence sur l'aimantation moyenne de la couche magnétique que si celle-ci est suffisamment fine.

Pour un film ultramine isotrope dans le plan xy , on a $\mathbf{d}_{ij} \propto \mathbf{u}_{ij} \times \hat{\mathbf{z}}$, où \mathbf{u}_{ij} est le vecteur unitaire entre les sites i et j . Dans une description micromagnétique, la densité

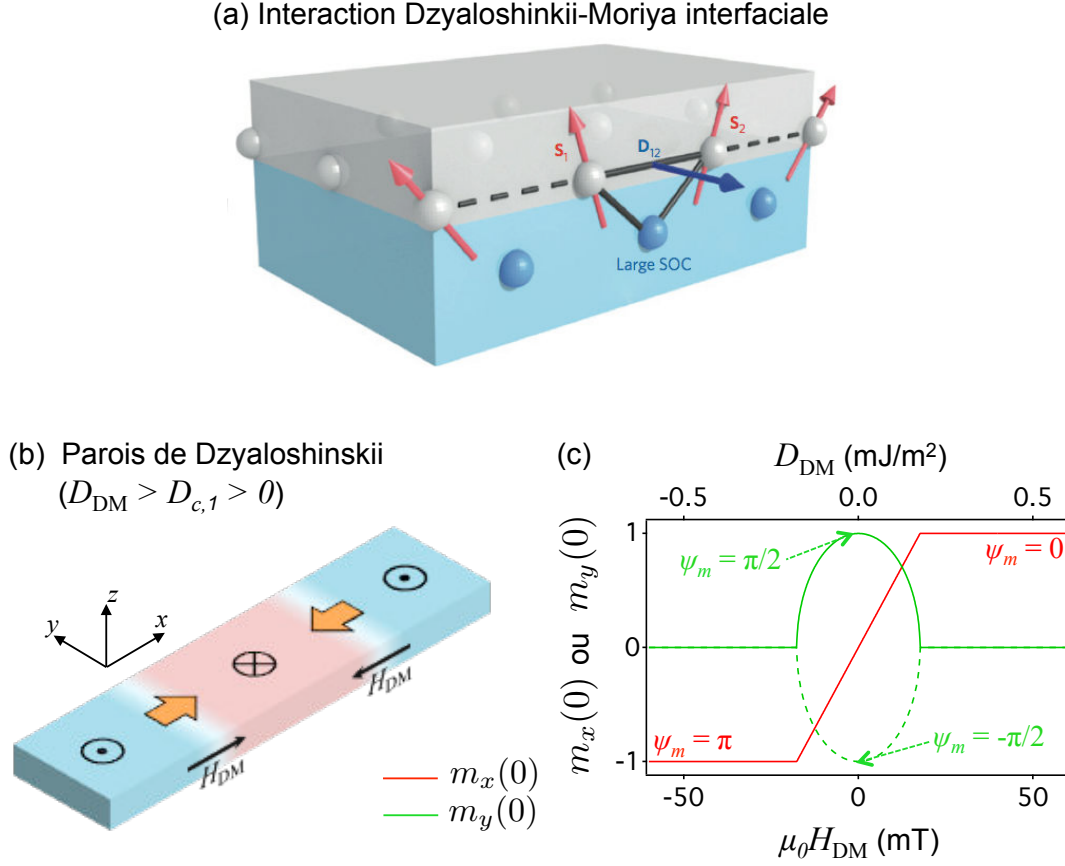


FIGURE 3.3 – (a) Représentation schématique de l'interaction DM à l'interface entre un métal ferromagnétique (gris) et un métal avec un fort couplage spin-orbite (bleu). Le vecteur \mathbf{D}_{12} de l'interaction DM entre les spins \mathbf{S}_1 et \mathbf{S}_2 est perpendiculaire au plan du triangle composé des deux sites magnétiques et d'un atome avec un fort couplage spin-orbite. Figure tirée de la référence [158]. (b) L'interaction DM agit sur les parois de domaine comme un champ effectif H_{DM} selon x , dont le signe s'inverse pour des parois $\uparrow\downarrow$ et $\downarrow\uparrow$ consécutives. Pour D_{DM} suffisamment fort, on obtient ainsi des parois de Néel monochirales, dites de Dzyaloshinskii. (c) Composantes planaires $m_x = m_{\parallel} \cos \psi_m$ et $m_y = m_{\parallel} \sin \psi_m$ au centre d'une paroi $\uparrow\downarrow$, à l'équilibre et en champ magnétique nul, en fonction de l'intensité de l'interaction DM exprimée en champ effectif H_{DM} (échelle du bas) ou en constante D_{DM} (échelle du haut). Les deux branches de m_y (lignes vertes continue et pointillée) correspondent aux deux signes possibles, qui sont dégénérés tant que $H_y = 0$. Les paramètres utilisés sont : $t = 1$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 10$ nm. La valeur critique pour stabiliser une paroi de Néel pure vaut $\mu_0 H_{c,1} \approx 18$ mT, soit $D_{c,1} \approx 0.18$ mJ/m².

volumique d'énergie DM s'écrit alors [160]

$$\varepsilon_{DM} = D_{DM} \left[\left(m_x \frac{\partial m_z}{\partial x} - m_z \frac{\partial m_x}{\partial x} \right) + \left(m_y \frac{\partial m_z}{\partial x} - m_z \frac{\partial m_y}{\partial x} \right) \right], \quad (3.12)$$

où D_{DM} est la constante DM effective de la couche magnétique (en J/m²).

Thiaville et collègues ont montré numériquement que l'ajout de ce terme à l'énergie de la paroi dans l'équation (3.1) a très peu d'effet sur le profil $\theta_m(x)$ à l'équilibre [152]. De plus, en intégrant le terme ε_{DM} à l'énergie de la paroi, l'équation (3.7) est modifiée

selon [142]

$$\sigma_{\text{tot}} = \sigma_0 + \sigma_d \cos^2 \psi_m - [(\sigma_{H_x} + \sigma_{\text{DM}}) \cos \psi_m + \sigma_{H_y} \sin \psi_m] , \quad (3.13)$$

où $\sigma_{\text{DM}} = \pi^2 \Delta_p M_s \mu_0 D_{\text{DM}}$. Autrement dit, l'interaction DM agit sur la paroi comme un champ magnétique effectif selon x d'amplitude (figure 3.3b)

$$H_{\text{DM}} = \frac{D_{\text{DM}}}{\Delta_p M_s \mu_0} . \quad (3.14)$$

Par conséquent, la discussion sur l'effet d'un champ H_x sur la nature de la paroi (cf. § 3.2.1) est aussi valable pour l'effet de D_{DM} : il existe une transition continue de la paroi de Bloch vers la paroi de Néel droite ($\psi_m = 0$) lorsque D passe de 0 à $+\infty$, et vers la paroi de Néel gauche ($\psi_m = \pi$) lorsque D passe de 0 à $-\infty$, comme illustré dans la figure 3.3c. Ici, la compétition a lieu entre l'énergie démagnétisante, qui favorise une paroi de Bloch, et l'énergie DM, qui favorise une paroi de Néel avec une chiralité fixée par le signe de D_{DM} . Comme précédemment, le champ effectif critique au-delà duquel la paroi est purement de type Néel vaut $\mu_0 H_{c,1} \sim 20$ mT, auquel on associe une constante DM critique

$$D_{c,1} = \frac{2 \ln 2 \mu_0 M_s^2 t}{\pi^2} \sim 0.2 \text{ mJ/m}^2 . \quad (3.15)$$

Il est important de noter que l'expression $\sigma_{\text{DM}} = \pi^2 \Delta_p M_s \mu_0 D_{\text{DM}}$ est valable pour une paroi de type $\uparrow\downarrow$ ($m_z > 0$ pour $x < 0$), mais que le signe de σ_{DM} est inversé pour une paroi $\downarrow\uparrow$. Cela implique que le sens du champ effectif H_{DM} est inversé pour des parois $\uparrow\downarrow$ et $\downarrow\uparrow$, comme illustré dans la figure 3.3b. Ainsi, pour une constante D_{DM} donnée telle que $|D_{\text{DM}}| > D_{c,1}$, les parois sont de type Néel avec une chiralité unique, gauche ou droite, fixée par le signe de D_{DM} . On parle alors de parois de Dzyaloshinskii [152], qui sont en fait des parois de Néel monochirales induites par l'interaction DM.

Notons pour être complets qu'il existe une deuxième transition $D_{c,2} > D_{c,1}$ qui correspond à la valeur de D_{DM} au-delà de laquelle l'énergie totale de la paroi σ_{tot} devient négative. En champ nul, on trouve d'après l'équation (3.13) que

$$D_{c,2} = \frac{\sigma_{\text{ech}} + \sigma_d}{\pi} \approx \frac{\sigma_{\text{ech}}}{\pi} . \quad (3.16)$$

Avec les paramètres de la figure 3.3 et en prenant $A = 20$ pJ/m et $K_{\text{eff}} = 0.2$ MJ/m³, on trouve $D_{c,2} \approx 2.6$ mJ/m², ou en termes de champ effectif $H_{c,2} \approx \frac{4K_{\text{eff}}}{\pi M_s} \approx 260$ mT. Lorsque $|D_{\text{DM}}| > D_{c,2}$, l'état ferromagnétique devient instable car la création d'une paroi permet d'abaisser l'énergie du système. On a alors l'apparition d'une spirale de spin cycloïdale pour un système confiné à la dimension x , ou bien d'un réseau de skyrmions pour une couche qui s'étend dans le plan xy [160].

Preuves expérimentales de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya

Si l'interaction DM est connue depuis de nombreuses années pour jouer un rôle essentiel sur le magnétisme des cristaux de basse symétrie [161, 162], son existence dans les couches ultraminces liée à la réduction de symétrie à l'interface n'a été considérée que bien plus tard [163, 164].

Expérimentalement, des textures d'aimantation chirales, attribuées à l'interaction DM, ont été observées dans plusieurs systèmes ultraminces monocristallins par microscopie à

effet tunnel polarisé en spin. Par exemple, des parois de Dzyaloshinskii ont été observées dans une bicouche de Fe sur W(110) [140]. Récemment, la même technique a permis d’imager un réseau de skyrmions, et même des skyrmions individuels, dans une bicouche de PdFe sur Ir(111) [165]. En utilisant un microscope électronique à basse énergie résolu en spin, des parois de Dzyaloshinskii ont également été observées dans des échantillons modèles basés sur des multicouches (Co/Ni)_n sur Pt ou Ir [166].

Cependant, la question de savoir si l’interaction DM peut survivre dans des échantillons de moins bonne “qualité” – c’est-à-dire des échantillons polycristallins, structurés en pistes, et présentant des interfaces rugueuses – reste ouverte. C’est pourtant le cas de la plupart des échantillons d’intérêt technologique, qui sont généralement élaborés par pulvérisation cathodique, puis structurés par lithographie et gravure ionique pour pouvoir y étudier, par exemple, le déplacement des parois sous courant. En effet, il n’existe pas actuellement de technique de microscopie permettant d’imager la structure interne des parois de domaine dans ce type de système ultramince.

Toutefois, à la lumière de la discussion précédente sur l’effet de l’interaction DM sur une paroi, il apparaît qu’une manière indirecte de mettre en évidence et quantifier cette interaction DM consiste à démontrer l’existence d’un champ effectif H_{DM} . Cela peut être réalisé en observant l’effet d’un champ additionnel H_x sur la vitesse de propagation des parois de domaine : en variant H_x , le champ net $H_x + H_{DM}$ peut être balayé pour explorer la transition Bloch/Néel, permettant ainsi de déceler un éventuel décalage de la transition causée par H_{DM} , puisque la paroi sera purement de type Bloch seulement lorsque le champ appliqué vérifie $H_x = -H_{DM}$. En exploitant cette idée, plusieurs groupes ont identifié la présence d’un champ effectif interne significatif, en propageant les parois soit par un courant électrique [147–149, 154, 167], soit en appliquant un champ perpendiculaire H_z [142, 168]. De plus, ce champ effectif change de signe pour des parois $\uparrow\downarrow$ et $\downarrow\uparrow$, comme attendu pour un champ lié à l’interaction DM.

En résumé, il existe aujourd’hui un faisceau d’indices pointant, dans les structures ultraminces asymétriques, vers l’existence d’une interaction DM interfaciale qui stabilise des parois de Néel monochirales. Cependant, dans la plupart des échantillons étudiés jusqu’alors, la structure interne des parois n’a jamais pu être observée de manière directe. Les preuves indirectes obtenues reposent sur l’étude du mouvement des parois sous l’effet d’un courant ou d’un champ, et impliquent donc un certain nombre d’hypothèses quant à leur dynamique. Ainsi, une méthode directe pour déterminer la structure interne des parois au repos, applicable à tous types d’échantillon, est désirable car elle permettrait de confirmer ou infirmer certaines des interprétations proposées, et progresser dans la compréhension de la physique du mouvement des parois sous courant. Dans la section suivante, nous décrivons une méthode basée sur la microscopie à centre NV qui répond à ces critères.

3.3 Détermination directe de la nature d’une paroi de domaine

Dans cette section, nous commencerons par décrire une méthode originale permettant de déterminer la nature d’une paroi de domaine dans une couche à aimantation perpendiculaire, puis nous expliquerons la manière dont on peut la mettre en œuvre avec le microscope à centre NV (§ 3.3.1). Nous détaillerons ensuite une étape cruciale de sa

réalisation, à savoir la calibration précise des paramètres de l'expérience (§ 3.3.2). Enfin, nous présenterons et discuterons les résultats obtenus sur des parois de domaines dans des échantillons de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO (§ 3.3.3) puis dans un échantillon de Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x (§ 3.3.4).

3.3.1 Principe de la méthode

L'idée générale de la méthode que nous allons exposer ici a été proposée par Stanislas Rohart et André Thiaville, du Laboratoire de Physique des Solides à Orsay. Il s'agit de mesurer, de manière *quantitative* et avec une résolution spatiale nanométrique, le champ de fuite généré par la paroi, lequel *dépend* de sa nature [38]. Ceci est illustré dans la figure 3.4a, qui montre de manière schématique le champ de fuite de différents types de paroi : paroi de Bloch, paroi de Néel de chiralité gauche, et paroi de Néel de chiralité droite. On peut distinguer deux contributions au champ de fuite total, la contribution de l'aimantation perpendiculaire m_z d'une part, et celle de la composante planaire \mathbf{m}_{\parallel} d'autre part. C'est cette dernière qui dépend de la nature de la paroi.

Pour décrire plus précisément le principe de la méthode, nous considérons dans cette section une situation simplifiée qui nous permet d'obtenir des expressions analytiques du champ magnétique généré par la paroi. Les détails de ces calculs sont donnés dans l'annexe A.

On suppose que la couche magnétique s'étend à l'infini dans le plan xy et contient une paroi de domaine placée en $x = 0$, le problème étant invariant par translation selon y . Nous cherchons à calculer le champ de fuite à une distance d de la couche magnétique, supposée satisfaire les conditions $d \gg (t, \Delta_p)$. Nous avons vu dans la section 3.2.1 que la composante perpendiculaire de l'aimantation est décrite par $m_z = -\tanh(x/\Delta_p)$. Ce profil d'aimantation produit un champ de fuite \mathbf{B}^{\perp} au niveau de la paroi, dont les composantes s'écrivent (cf. § A.3.1)

$$\begin{cases} B_x^{\perp}(x) \approx \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{d}{x^2 + d^2} \\ B_z^{\perp}(x) \approx -\frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{x}{x^2 + d^2} \end{cases} . \quad (3.17)$$

D'autre part, la composante planaire de l'aimantation $\mathbf{m}_{\parallel} = (m_x, m_y)$ a une amplitude donnée par l'équation (3.5), soit $m_{\parallel}(x) = 1/\cosh(x/\Delta_p)$. Elle produit un champ de fuite de la forme $\cos \psi_m \mathbf{B}^{\parallel}$, où $\psi_m = \tan^{-1}(m_y/m_x)$ est l'angle qui caractérise la nature de la paroi et \mathbf{B}^{\parallel} est le champ généré dans le cas d'une paroi de Néel droite ($\psi_m = 0$). Les composantes de \mathbf{B}^{\parallel} sont données par (cf. § A.3.1)

$$\begin{cases} B_x^{\parallel}(x) \approx \frac{1}{2} \mu_0 M_s t \Delta_p \frac{x^2 - d^2}{(x^2 + d^2)^2} \\ B_z^{\parallel}(x) \approx \mu_0 M_s t \Delta_p \frac{xd}{(x^2 + d^2)^2} \end{cases} . \quad (3.18)$$

Pour un angle ψ_m donné, le champ total \mathbf{B}^{ψ_m} est donc simplement la somme

$$\mathbf{B}^{\psi_m}(x) = \mathbf{B}^{\perp}(x) + \cos \psi_m \mathbf{B}^{\parallel}(x) . \quad (3.19)$$

Comme $\Delta_p \ll d$, on a en général $\|\mathbf{B}^{\parallel}\| \ll \|\mathbf{B}^{\perp}\|$. Autrement dit, la contribution de l'aimantation planaire de la paroi \mathbf{m}_{\parallel} agit comme une petite correction par rapport à la contribution principale de l'aimantation perpendiculaire m_z . De plus, le signe et

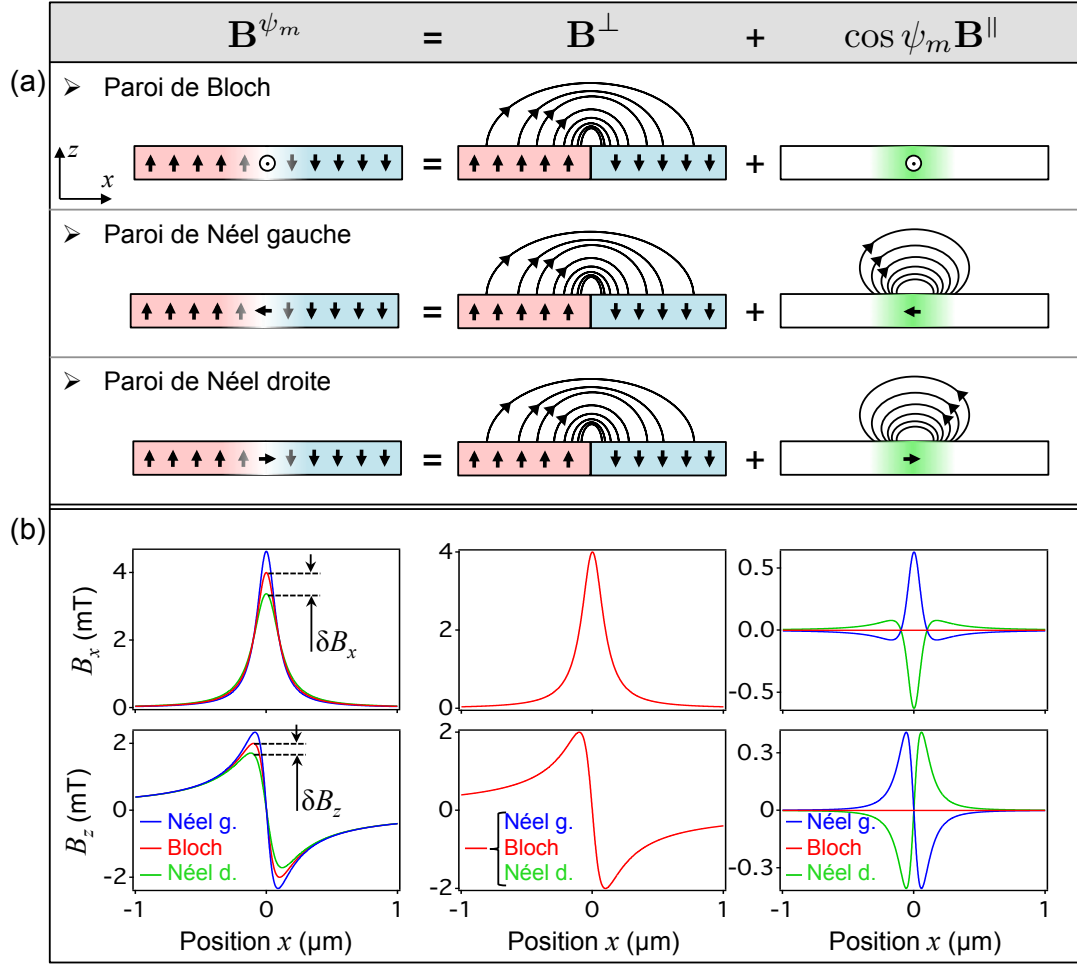


FIGURE 3.4 – (a) Le champ de fuite \mathbf{B}^{ψ_m} d'une paroi de domaine (colonne de gauche) peut être décomposé en deux contributions, celle de la composante perpendiculaire de l'aimantation m_z , qui produit un champ \mathbf{B}^\perp (colonne du milieu), et celle de la composante planaire \mathbf{m}_\parallel , qui produit un champ de la forme $\cos \psi_m \mathbf{B}^\parallel$ (colonne de droite). La nature de la paroi (ici Bloch, Néel gauche ou Néel droite) affecte seulement la contribution de \mathbf{m}_\parallel . (b) Champ de fuite calculé à une distance $d = 100$ nm pour une paroi de Bloch (courbes rouge), de Néel gauche (courbes bleues) et de Néel droite (courbes vertes). Les graphes du haut (resp. du bas) correspondent à la composante B_x (resp. B_z). Les différentes colonnes montrent les différents contributions : champ total à gauche, contribution de m_z au milieu, contribution de \mathbf{m}_\parallel à droite. Les paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 10$ nm.

l'amplitude de cette correction dépendent de la nature de la paroi. L'expression (3.19) indique ainsi qu'une paroi de Néel ($\cos \psi_m = \pm 1$) produit un champ supplémentaire par rapport à une paroi de Bloch, qui s'additionne ($\cos \psi_m = +1$, paroi de Néel droite) ou se soustrait ($\cos \psi_m = -1$, paroi de Néel gauche) à la contribution principale \mathbf{B}^\perp . Ce champ de fuite additionnel est causé par la présence de charges magnétiques de part et d'autre de la paroi en $x \sim \pm \Delta_p$, alors que ces charges sont repoussées à l'infini selon la direction y dans le cas d'une paroi de Bloch (cf. figure 3.2b). C'est d'ailleurs pour cette même raison que la paroi de Néel a un coût énergétique plus élevé qu'une paroi de Bloch – en l'absence d'interaction DM – puisque ces charges induisent une énergie démagnétisante

supplémentaire.

À titre d'illustration, la figure 3.4b montre les différentes composantes de champ calculées pour les différents types de paroi (Bloch, Néel gauche, Néel droite) avec des paramètres typiques de nos conditions expérimentales. Notons que les cas intermédiaires tels que $0 < |\cos \psi_m| < 1$ sont également autorisés en principe (cf. § 3.2.3). D'après les équations (3.17) et (3.18), la différence relative maximale entre le champ d'une paroi de Bloch et d'une paroi de Néel vaut

$$\left| \frac{\delta B_x}{B_x} \right|_{x=0} = \left| \frac{\delta B_z}{B_z} \right|_{x=\pm d} = \frac{\pi \Delta_p}{2d} . \quad (3.20)$$

Cette formule indique que la paroi doit être suffisamment large, et la hauteur de vol suffisamment faible, pour aboutir à une différence significative. Pour des paramètres typiques tels que $d = 100$ nm et $\Delta_p = 10$ nm, on trouve que cette différence vaut $\approx 15\%$. Par ailleurs, pour cette même distance de 100 nm, le champ au-dessus de la paroi atteint environ 4 mT pour la composante B_x . Le champ net vaut donc 4.0, 4.6 et 3.4 mT pour une paroi de Bloch, de Néel gauche et de Néel droite, respectivement.

Mise en œuvre de la méthode par microscopie à centre NV

En principe, la microscopie à centre NV devrait permettre de mesurer ce champ de manière assez précise et avec une résolution spatiale suffisante pour en déduire la nature de la paroi. En effet, elle est capable de mesurer des champs magnétiques de manière quantitative dans la gamme 0 – 5 mT, avec une précision de l'ordre de 10 μ T en une seconde d'intégration (cf. chapitre 1). De plus, la mesure est effectuée dans un volume effectif de quelques (nm)³, ce qui est suffisant pour mesurer, à une distance $d \sim 100$ nm, la distribution du champ de fuite d'une paroi de domaine sans introduire de moyennage spatial significatif.

En pratique cependant, une difficulté supplémentaire vient du fait que les paramètres intervenant dans les formules (3.17) et (3.18) ne sont pas connus a priori avec une grande précision. Il s'agit de la distance d à laquelle le centre NV se trouve par rapport à la couche ferromagnétique, du produit $I_s = M_s t$ qui caractérise la densité de moments magnétiques de la couche, et enfin de la largeur de paroi Δ_p . Par conséquent, il convient de trouver une méthode pour déterminer ces paramètres *in situ*, afin de permettre l'analyse précise du champ de fuite d'une paroi de domaine.

Pour cela, nous exploitons le fait que le champ de fuite généré par un bord abrupt de la couche ferromagnétique, \mathbf{B}^{bord} , prend une forme similaire à celui d'une paroi de domaine de type Bloch, à savoir $\mathbf{B}^{\text{bord}} \approx \mathbf{B}^\perp/2$ (cf. § A.3.1). D'après l'équation (3.17), le champ \mathbf{B}^{bord} ne dépend donc que de deux paramètres indépendants, d et I_s . Une mesure de ce champ de fuite permet donc d'extraire d et I_s , ce qui permet alors de prédire le champ \mathbf{B}^\perp d'une paroi avec précision. Seul le paramètre Δ_p reste connu de manière imprécise, ce qui résulte en une composante \mathbf{B}^\parallel prédite avec moins de précision (cf. § B.3).

Cette stratégie est résumée dans la figure 3.5a. L'étude d'une paroi procède ainsi en deux temps.

1. Les paramètres d et I_s sont d'abord déterminés par une mesure du champ de fuite au-dessus d'un bord de la couche magnétique.
2. Le champ de fuite de la paroi est mesuré dans les mêmes conditions que lors de l'étape de calibration. Les paramètres obtenus à l'étape 1 permettent de prédire le

champ de fuite attendu, qui est comparé aux données expérimentales. La comparaison permet ainsi de tester les différentes hypothèses sur la nature de la paroi (Bloch, Néel gauche, Néel droite).

Les graphes dans la figure 3.5a montrent par exemple le cas où l'axe du centre NV serait parallèle à x , c'est-à-dire que la composante $B_{NV} = |B_x|$ du champ serait mesurée.

Notons que le champ de la paroi de Bloch peut être prédit sans même avoir à déterminer

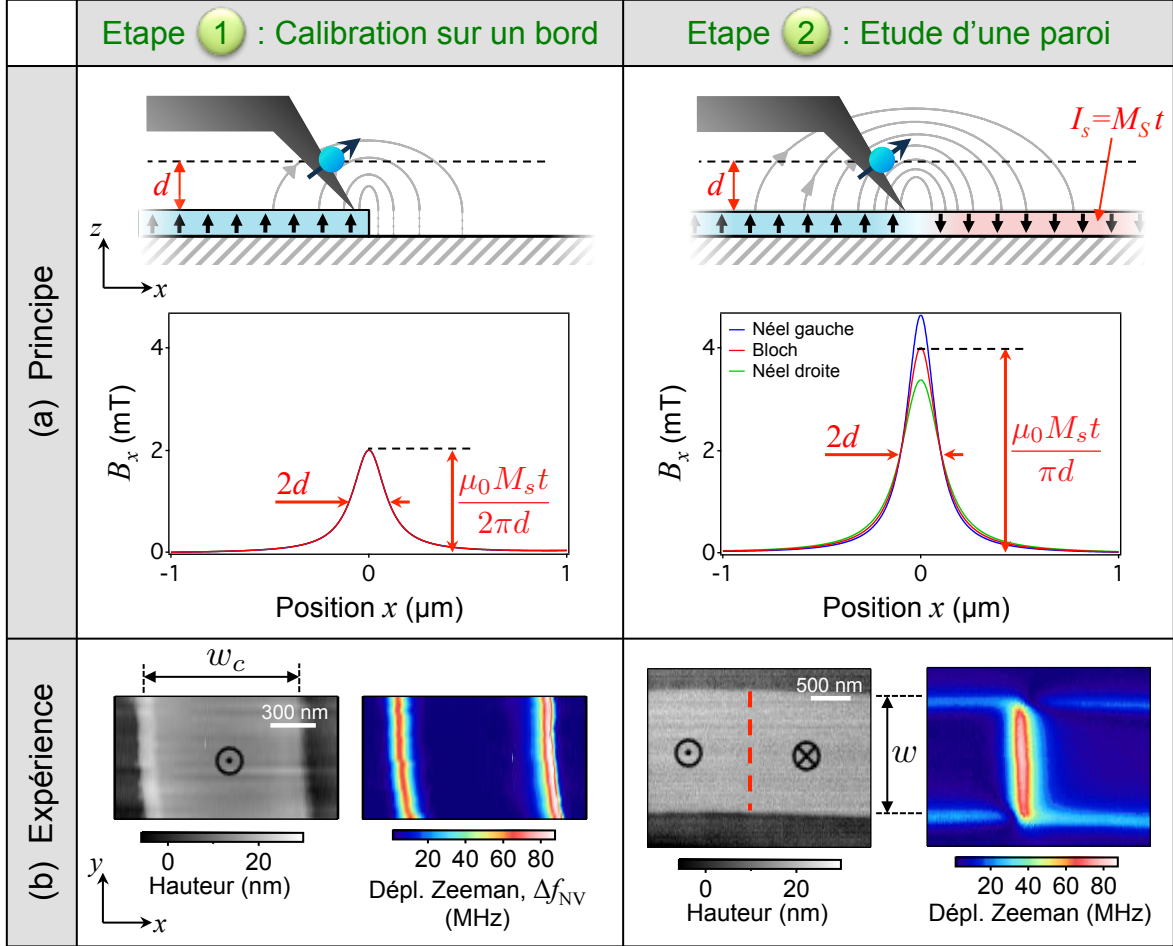


FIGURE 3.5 – (a) Illustration de la stratégie générale pour analyser quantitativement le champ de fuite d'une paroi de domaine par microscopie à centre NV. Une première mesure du champ de fuite sur un bord de la couche magnétique permet de calibrer l'expérience en déterminant les paramètres d et $I_s = M_s t$ (1). Le champ de la paroi est ensuite mesuré dans les mêmes conditions et comparé à la théorie (2), laquelle inclut les paramètres d et I_s obtenus à l'étape (1). Les graphes montrent la composante B_x calculée à une distance $d = 100$ nm au-dessus d'un bord (1) et d'une paroi de domaine (2). Les paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 10$ nm. (b) Expérimentalement, le film magnétique est structuré en pistes pour chacune des deux étapes. Pour la calibration, on utilise une piste uniformément aimantée, de largeur w_c (1), tandis que la paroi de domaine est confinée dans une piste de largeur w (2). Les images sont des résultats typiques obtenus avec le microscope à centre NV sur un échantillon de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, montrant dans les deux cas une image AFM ainsi que la carte de champ correspondante, exprimée en termes de déplacement Zeeman $\Delta f_{NV} = f_+ - D$.

explicitement d et I_s . Une fois \mathbf{B}^{bord} – ou l'une de ses composantes vectorielles – mesuré, on peut en effet prédire le champ attendu pour une paroi de Bloch dans les mêmes conditions, puisque $\mathbf{B}^\perp \approx 2\mathbf{B}^{\text{bord}}$. Toute déviation du champ mesuré sur la paroi – au-delà de l'erreur expérimentale – par rapport au champ prédit \mathbf{B}^\perp indiquerait alors que la paroi n'est pas purement de type Bloch. Ce point est discuté plus en détail dans l'annexe B. L'extraction explicite de d et I_s est néanmoins importante en général, non seulement pour prédire la composante \mathbf{B}^\parallel des parois de Néel, mais aussi pour pouvoir calculer le champ d'une structure plus complexe, telle qu'une paroi de forme non triviale confinée dans une piste de largeur finie (cf. § 3.3.3).

Expérimentalement, il est pratique de travailler sur des structures de dimensions finies car cela fournit une référence de dimension spatiale. Nous utiliserons donc des pistes de largeur finie, à savoir une piste de largeur w_c d'aimantation uniforme pour l'étape de calibration, et une piste de largeur w pour l'étude de la paroi de domaine (figure 3.5b). De plus, on peut montrer qu'il est important que ces deux pistes soit orientées perpendiculairement l'une par rapport à l'autre, afin de minimiser l'incertitude sur les prédictions théoriques (cf. annexe B). Pour mettre en œuvre cette méthode avec le microscope à centre NV, nous avons donc structuré les films magnétiques de manière à former pour chaque échantillon deux séries de pistes, dont les axes sont parallèles à y pour la calibration, et parallèles à x pour l'imagerie des parois de domaine.

Des exemples de cartes de champ de fuite acquises par microscopie à centre NV sont montrés dans la figure 3.5b. Elles ont été obtenues sur un échantillon de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO qui sera décrit plus en détail dans la section 3.3.3, et illustrent à nouveau la procédure suivie. Le champ de fuite de la piste de calibration est d'abord mesuré, avant de cartographier le champ de fuite de la paroi de domaine. Nous allons maintenant détailler la procédure de calibration (§ 3.3.2), puis nous analyserons les images de parois de domaine obtenues sur différents échantillons, afin d'en déduire la nature des parois (§ 3.3.3 et § 3.3.4).

3.3.2 Procédure de calibration

L'étape de calibration permet de déterminer la distance de mesure d ainsi que le paramètre $I_s = M_s t$, qui correspond à la densité de moments magnétiques par unité de surface de la couche. Pour cela, on utilise un centre NV d'orientation donnée pour mesurer le champ de fuite généré au-dessus des bords de la piste. Précisément, la fréquence de résonance f_+ du spin du centre NV est mesurée par la technique de suivi actif avec des spectres ESR à $N = 10 - 20$ fréquences (§ 2.3.2). On en déduit le déplacement Zeeman Δf_{NV} , défini comme $\Delta f_{\text{NV}} = f_+ - D$ où D est le paramètre de clivage axial. Afin d'éviter toute approximation inutile, ce déplacement Zeeman *n'est pas converti* en champ magnétique B_{NV} (cf. § 1.3.2). Toutes les mesures de champ magnétique, dans cette section ainsi que les deux suivantes (§ 3.3.3 et § 3.3.4), seront donc exprimées en termes de déplacement Zeeman du spin du centre NV.

Pour obtenir une coupe de calibration, le centre NV est balayé à travers une piste de la couche magnétique selon la direction x , comme schématisé dans la figure 3.6a. Comme la hauteur de vol d est de l'ordre de 100 nm dans nos expériences, on a $d \gg t$ de sorte que les bords de la couche magnétique peuvent être considérés comme abruptes, c'est-à-dire $M_z(-w_c < x < 0) = M_s$ et $M_z = 0$ autrement, avec w_c la largeur de la piste.

En réalité, du fait de la topographie de l'échantillon, la distance effective entre le centre NV et la couche magnétique varie durant le balayage (figure 3.6a). Cette distance

dépendante de la position peut s'écrire comme $d_{\text{eff}}(x) = d + \delta d(x)$, où $\delta d(x) = 0$ en moyenne lorsque la pointe est au-dessus de la piste, et $\delta d(x) = -\delta d_m$ en moyenne lorsque la pointe est au-dessus du substrat nu. Ici δd_m est la hauteur des structures magnétiques définie lors de l'étape de gravure permettant de former les pistes, qui vaut typiquement entre 10 et 30 nm. Expérimentalement, on a accès aux variations relatives de $d_{\text{eff}}(x)$ grâce à l'information topographique de l'AFM, ce qui permet de fixer $\delta d(x)$. Par conséquent, seule la distance absolue, caractérisée par d , est inconnue.

Les composantes du champ de fuite au-dessus d'un bord abrupt parallèle à la direction y et positionné en $x = 0$, tel que $M_z(x < 0) = +M_s$, sont données par (cf. § A.3.1)

$$\begin{cases} B_x^{\text{bord}}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{d_{\text{eff}}(x)}{x^2 + d_{\text{eff}}^2(x)} \\ B_z^{\text{bord}}(x) = -\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{x}{x^2 + d_{\text{eff}}^2(x)} \end{cases} . \quad (3.21)$$

Le champ au-dessus d'une piste est obtenu en additionnant simplement les contributions des deux bords, soit

$$\mathbf{B}^{\text{piste}}(x) = \mathbf{B}^{\text{bord}}(x) - \mathbf{B}^{\text{bord}}(x + w_c) , \quad (3.22)$$

avec w_c la largeur de la piste de calibration. En utilisant les équations (3.21) et (3.22), on obtient une formule analytique pour le champ au-dessus de la piste. Ce champ est ensuite converti en un déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}} = f_+ - D$ en diagonalisant le Hamiltonien du centre NV (cf. § 1.3.1)

$$\mathcal{H} = hDS_Z^2 + hE(S_X^2 - S_Y^2) + g_{\text{NV}}\mu_B \mathbf{B} \cdot \mathbf{S} . \quad (3.23)$$

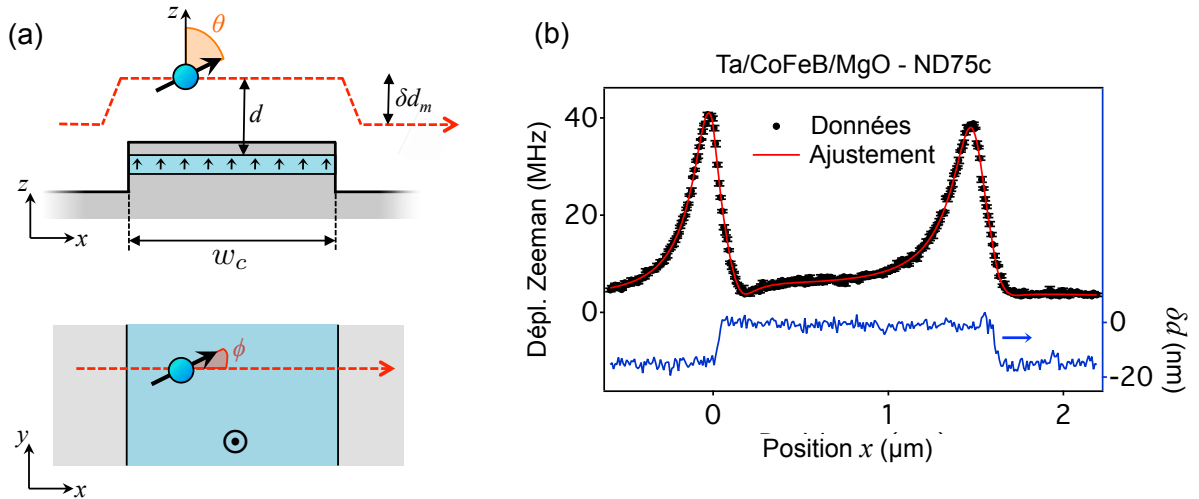


FIGURE 3.6 – (a) Principe de l'expérience de calibration. Le déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{piste}}(x)$ est mesuré en balayant le centre NV à travers une piste magnétique uniformément aimantée. (b) Exemple de mesure réalisée sur une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, avec un centre NV orienté selon ($\theta = 62^\circ$, $\phi = -25^\circ$). La courbe rouge est l'ajustement aux données, comme expliqué dans le texte. La courbe bleue est la topographie de l'échantillon mesurée simultanément par l'AFM, utilisée pour définir la variation de distance $\delta d(x)$ dans la fonction d'ajustement.

Ici, l'axe Z correspond à l'axe de symétrie du centre NV, caractérisé par les angles sphériques (θ, ϕ) dans le référentiel xyz , D et E sont les paramètres de clivage du centre NV.

On obtient ainsi une fonction d'ajustement $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{piste}}(x)$ dont les seuls paramètres libres sont la distance maximum d et l'aimantation I_s . Notons que les paramètres géométriques de la piste (largeur w_c et hauteur δd_m), mesurés indépendamment avec un AFM calibré, servent de référence pour corriger les échelles de longueur dans les données expérimentales selon x et z avant de procéder à l'ajustement.

Un exemple de mesure est montré dans la figure 3.6b, réalisée sur une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO de largeur $w_c = 1.5 \mu\text{m}$. La courbe rouge est le résultat de l'ajustement, en très bon accord avec les données. Dans cet exemple, on trouve les valeurs nominales suivantes pour les paramètres d'ajustement : $d = 122.9 \text{ nm}$ et $I_s = 926.3 \mu\text{A}$. Nous allons maintenant examiner les différentes sources d'incertitude afin de donner un intervalle de confiance pour ces paramètres.

Incertitudes sur la calibration

L'incertitude sur les paramètres ajustables $\{d, I_s\}$ vient des incertitudes sur

1. la procédure d'ajustement ;
2. les paramètres du centre NV (θ, ϕ, D, E) ;
3. les paramètres géométriques de la piste magnétique $(w_c, \delta d_m)$.

Il y a ainsi six paramètres indépendants $\{p_i\} = \{\theta, \phi, D, E, w_c, \delta d_m\}$ qui introduisent des incertitudes sur le résultat de l'ajustement. Dans la suite, ces paramètres sont notés $p_i = \bar{p}_i \pm \sigma_{p_i}$ où \bar{p}_i est la valeur nominale du paramètre p_i et σ_{p_i} son erreur standard. Les incertitudes sur θ, ϕ, D et E ont été discutées au chapitre 2, tandis que celles sur w_c et δd_m viennent de la précision de l'AFM utilisé. La table 3.1 donne les valeurs nominales et erreurs standards de ces six paramètres dans le cas des données montrées dans la figure 3.6b, qu'on gardera comme exemple dans toute cette section.

L'incertitude et la reproductibilité de la procédure d'ajustement ont d'abord été analysées en ajustant plusieurs coupes de calibration indépendantes avec les paramètres $\{p_i\}$ fixés à leurs valeurs nominales $\{\bar{p}_i\}$. Les histogrammes des résultats pour d et I_s , obtenus avec un ensemble de 13 coupes de calibration, sont montrés dans les figures 3.7a et 3.7b. À partir de ces distributions, on obtient $d_{\bar{p}_i} = 122.9 \pm 0.7 \text{ nm}$ et $I_{s, \bar{p}_i} = 926.3 \pm 2.8 \mu\text{A}$. Ici, la barre d'erreur est donnée par la déviation standard de la statistique. L'incertitude relative induite par la procédure d'ajustement est donc $\epsilon_{d/\text{ajust}} = 0.6\%$ pour d et $\epsilon_{I_s/\text{ajust}} = 0.3\%$ pour I_s .

Estimons maintenant les incertitudes relatives sur les résultats de l'ajustement, notées ϵ_{d/p_i} et ϵ_{I_s/p_i} , liées à chaque paramètre indépendant p_i . Dans ce but, la série de coupes de calibration est ajustée avec un paramètre p_i fixé à $p_i = \bar{p}_i \pm \sigma_{p_i}$, les cinq autres paramètres restant fixés à leurs valeurs nominales. Les valeurs moyennes résultantes pour le paramètre ajustable $X \in \{d, I_s\}$ sont notées $X_{\bar{p}_i + \sigma_{p_i}}$ et $X_{\bar{p}_i - \sigma_{p_i}}$, et l'incertitude relative induite par l'erreur sur le paramètre p_i est finalement définie comme

$$\epsilon_{X/p_i} = \frac{X_{\bar{p}_i + \sigma_{p_i}} - X_{\bar{p}_i - \sigma_{p_i}}}{2X_{\bar{p}_i}} = \frac{\Delta_{X, p_i}}{2X_{\bar{p}_i}}. \quad (3.24)$$

Pour illustrer la méthode, nous représentons dans les figures 3.7c et 3.7d les histogrammes des résultats de l'ajustement lorsque le paramètre de clivage D du centre NV est changé de

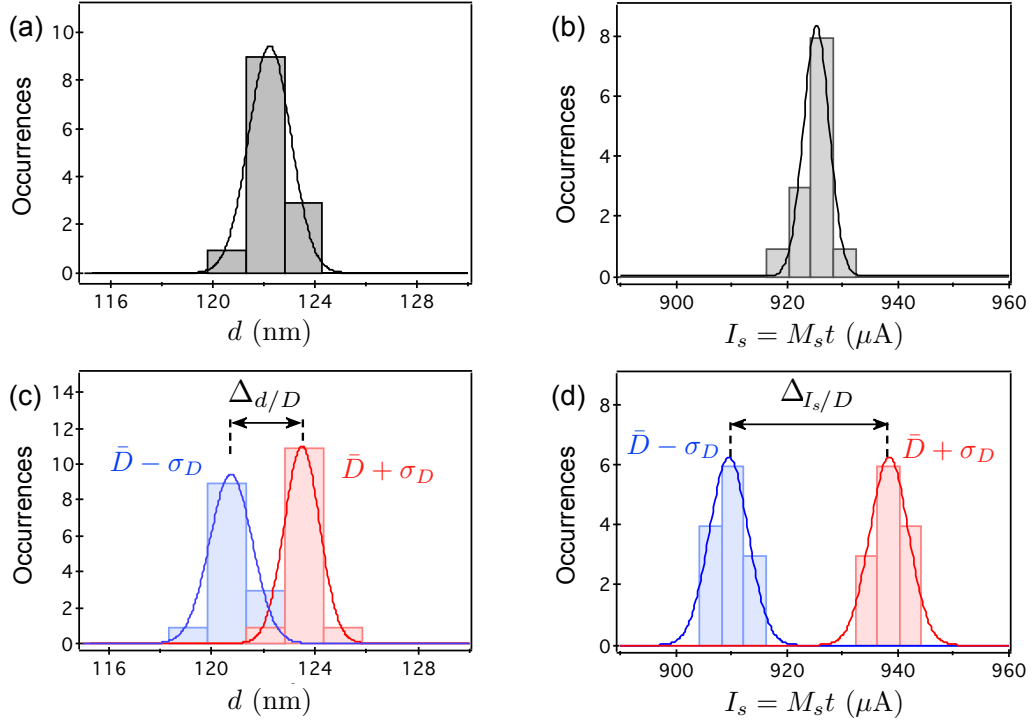


FIGURE 3.7 – (a,b) Histogrammes des résultats de l'ajustement pour d (a) et $I_s = M_s t$ (b), obtenus pour une série de 13 coupes de calibration sur une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO en fixant les paramètres $\{p_i\}$ à leurs valeurs nominales $\{\bar{p}_i\}$. (c,d) Histogrammes des résultats de l'ajustement avec le paramètre de clivage D fixé à $D = \bar{D} \pm \sigma_D$ tandis que les cinq autres paramètres sont fixés à leurs valeurs nominales. Les notations sont définies dans le texte.

paramètre p_i	valeur nominale \bar{p}_i	incertitude σ_{p_i}	$\epsilon_{d/p_i}(\%)$	$\epsilon_{I_s/p_i}(\%)$
w_c	1500 nm	30 nm	1.8	2.0
δd_m	17 nm	2 nm	1.0	0.2
θ	62°	2°	0.9	0.7
ϕ	-25°	2°	0.2	1.2
D	2969.5 MHz	0.2 MHz	1.0	1.6
E	3.3 MHz	0.2 MHz	0.5	0.5
$\epsilon_X = \sqrt{\epsilon_{X/\text{ajust}}^2 + \sum_i \epsilon_{X/p_i}^2}$			2.5	2.9

TABLE 3.1 – Estimation de l'incertitude ϵ_{X/p_i} sur la valeur du paramètre $X \in \{d, I_s\}$ reliée à l'erreur sur le paramètre p_i . L'incertitude globale ϵ_X est estimée avec l'équation (3.25), en supposant que toutes les erreurs sont indépendantes. Les déviations standards obtenues sur une série de 13 coupes sont $\epsilon_{d/\text{ajust}} = 0.6\%$ et $\epsilon_{I_s/\text{ajust}} = 0.3\%$.

$\bar{D} - \sigma_D$ à $\bar{D} + \sigma_D$. Pour ce paramètre, les incertitudes relatives sur d et I_s sont $\epsilon_{d/D} = 1.0\%$ et $\epsilon_{I_s/D} = 1.6\%$, respectivement. La même analyse est réalisée pour tous les paramètres p_i et les incertitudes correspondantes sont données dans la table 3.1. L'incertitude cumulée

est finalement donnée par

$$\epsilon_X = \sqrt{\epsilon_{X/\text{ajust}}^2 + \sum_i \epsilon_{X/p_i}^2}, \quad (3.25)$$

où toutes les erreurs sont supposées indépendantes.

En suivant cette procédure, on obtient finalement dans notre exemple $d = 122.9 \pm 3.1$ nm et $I_s = 926 \pm 26$ μA . En prenant l'épaisseur nominale $t = 1$ nm, cela correspond à une aimantation à saturation $M_s \approx 9.26 \cdot 10^5$ A/m, en bon accord avec la valeur rapportée pour un échantillon similaire dans la référence [169]. Notons que la précision sur la mesure de I_s obtenue avec cette méthode, de l'ordre de 3%, est proche des précisions fournies par les méthodes conventionnelles pour les couches ultraminces [170]. Mais surtout, notre mesure sonde le matériau sur une surface de l'ordre de $d^2 \approx (100 \text{ nm})^2$, une amélioration de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux autres techniques existantes [169].

3.3.3 Résultats sur des échantillons de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO

Une fois l'expérience calibrée, c'est-à-dire qu'un nombre maximum de paramètres ont été déterminés, nous pouvons analyser les cartes de champ obtenues sur les parois de domaine afin d'en déduire leur nature. Dans cette section, nous allons nous intéresser à deux échantillons de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, qui diffèrent par la composition stœchiométrique de l'alliage de CoFeB. Nous commencerons par détailler la procédure d'analyse pour un premier échantillon, puis nous montrerons les résultats pour le second échantillon, de composition stœchiométrique différente.

Ces échantillons ont été élaborés et préparés par Berthold Ocker (Singulus Technology AG, Allemagne), Laurent Vila (INAC, Grenoble) ainsi que l'équipe de Dafiné Ravelosona (Institut d'Electronique Fondamentale, Orsay). Il s'agit d'empilements de Ta(5)|CoFeB(1)|MgO(2)|Ta(5) déposés par pulvérisation cathodique sur un substrat de silicium oxydé thermiquement (les nombres entre parenthèses indiquent les épaisseurs en nanomètres). Les films ont ensuite été structurés en pistes par lithographie électronique et gravure ionique. Une seconde étape de lithographie électronique permet de définir une piste en or, qui sert d'antenne rf pour l'excitation du centre NV. Des domaines ont finalement été nucléés dans les pistes magnétiques en injectant un courant électrique dans la piste en or.

Analyse d'une première paroi

L'échantillon considéré dans un premier temps possède une couche magnétique de stœchiométrie nominale $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$. Il comporte une piste principale contenant deux parois de domaines, ainsi qu'une piste perpendiculaire à la première qui sert pour la calibration (figure 3.8). Les dimensions finales des pistes sont $\delta d_m = 17 \pm 2$ nm et $w_c = w = 1500 \pm 30$ nm.

Les figures 3.9a et 3.9b montrent l'image AFM d'une portion de la piste ainsi que la carte de champ correspondante, révélant une paroi de domaine. Ces images ont été obtenues dans les mêmes conditions que pour enregistrer les coupes de calibration de la figure 3.6b, c'est-à-dire avec le même centre NV et la même hauteur de vol. De plus, la paroi de domaine est située à quelques micromètres seulement de la zone de calibration, de sorte que le paramètre I_s peut être considéré comme identique dans les deux cas.

Pour comparer la carte de champ expérimentale à la théorie, nous utilisons des simulations micromagnétiques qui permettent de décrire précisément la structure interne de

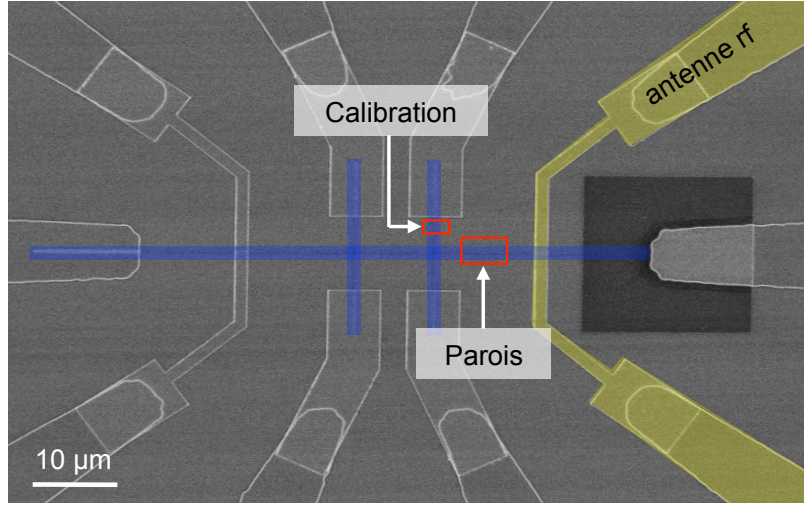


FIGURE 3.8 – Image de microscopie électronique à balayage de l'échantillon de Ta|Co₄₀Fe₄₀B₂₀(1 nm)|MgO après structuration. Les pistes colorées en bleu sont les pistes magnétiques, la piste colorée en jaune est l'antenne rf. Les rectangles rouges indiquent les zones utilisées pour la calibration et pour l'imagerie des parois de domaine.

la paroi. Précisément, nous utilisons le logiciel de calcul micromagnétique OOMMF [110] pour obtenir l'aimantation de la structure à l'équilibre puis, dans un second temps, nous calculons le champ de fuite et finalement le déplacement Zeeman (cf. § A.1).

Les différents paramètres de la simulation sont fixés à leurs valeurs nominales, qui sont déterminées comme suit. La largeur de la piste w est mesurée avec un AFM calibré. L'épaisseur de la couche magnétique t est estimée lors du dépôt de la couche magnétique. L'aimantation à saturation M_s est obtenue à partir du paramètre $I_s = M_s t$ fourni par l'étape de calibration. La constante d'anisotropie K_{mc} est obtenue à partir du champ d'anisotropie effective $H_{k,eff}$ mesuré expérimentalement [171], selon la formule $K_{mc} = \mu_0 M_s (M_s + H_{k,eff})/2$. Enfin, la constante d'échange A est estimée d'après les valeurs rapportées dans la littérature.

Pour l'échantillon de Ta|CoFeB|MgO, on prend par exemple $w = 1500$ nm, $t = 1$ nm, $M_s = 9.26 \cdot 10^5$ A/m, $K_{mc} = 5.9 \cdot 10^5$ J/m³ (d'après $\mu_0 H_{k,eff} = 107$ mT), et $A = 20$ pJ/m. Les incertitudes sur ces différents paramètres, ainsi que leur influence sur le résultats des simulations, sont analysées dans l'annexe B et seront discutées plus bas.

Par ailleurs, il est possible dans la simulation d'imposer une forme de paroi arbitraire. Nous considérerons ici une paroi droite, formant éventuellement un angle d'inclinaison ϕ_p par rapport à l'axe y , comme schématisé dans la figure 3.9c. Cet angle est directement estimé à partir de la carte de champ expérimentale, ce qui donne $\phi_p \approx 2 \pm 1^\circ$ dans l'exemple de la paroi imagée dans la figure 3.9b. L'incertitude sur ϕ_p permet de prendre en compte le fait que la paroi n'est pas nécessairement rigoureusement droite. Notons qu'une modélisation plus fine de la forme de la paroi peut également être réalisée, comme nous le verrons plus loin (cf. § 3.4.1). Cependant, comme le champ de fuite est peu sensible aux détails de la forme de la paroi (cf. § A.3.2), nous nous contenterons ici de l'approximation d'une paroi droite.

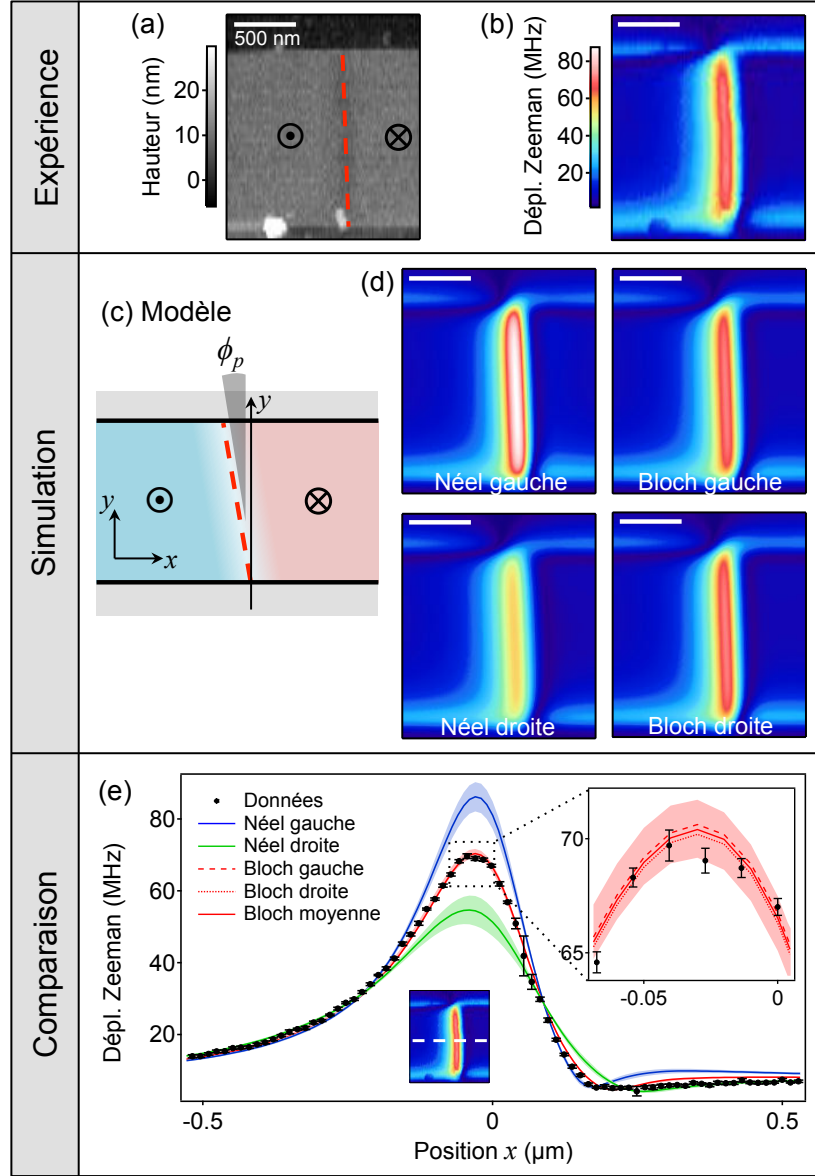


FIGURE 3.9 – (a) Image AFM d’une portion de piste de $\text{Ta}[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1\text{ nm})]\text{MgO}$. (b) Carte de champ correspondante, révélant une paroi de domaine. Le centre NV est orienté selon $(\theta = 62^\circ, \phi = -25^\circ)$. (c) Dans les simulations, la paroi est supposée droite avec une inclinaison ϕ_p par rapport à l’axe y , perpendiculaire au grand axe de la piste. (d) Cartes de champ calculées en prenant $\phi_p = 2^\circ$ pour quatre types de paroi différents. L’échelle de couleur est la même qu’en (b). (e) Coupes prises à travers la paroi dans (b) et (d), permettant de comparer l’expérience aux simulations. Le graphe en insert est un agrandissement près du maximum, montrant que la chiralité de la paroi de Bloch a un effet négligeable sur le champ de la paroi. Les nappes colorées dans (e) sont les intervalles de confiance à $\pm 1\sigma_f$, où σ_f est l’erreur standard estimée en fonction des incertitudes sur les paramètres du calcul.

Une fois la géométrie définie, le calcul de l’aimantation à l’équilibre $\mathbf{M}(x, y)$ est réalisé avec quatre initialisations différentes, correspondant aux parois de Bloch gauche, Bloch droite, Néel gauche et Néel droite (cf. § A.3.2). La distribution du champ de fuite $\mathbf{B}(x, y)$

est ensuite calculée à la distance d . Puis, connaissant l'axe de projection (θ, ϕ) du centre NV, on calcule finalement la carte du déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{paroi}}(x, y)$ après diagonalisation du Hamiltonien (3.23) du centre NV.

Déduction de la nature de la paroi

La figure 3.9d montre les images ainsi obtenues pour simuler la paroi observée dans la figure 3.9b. On constate tout d'abord que les images des parois de Bloch de chiralités gauche et droite sont très similaires. Un examen plus attentif (cf. insert de la figure 3.9e) montre que la différence relative près du maximum est de $\approx 0.6\%$, ce qui est inférieur à l'erreur de mesure. On se contentera donc désormais de considérer la moyenne du champ produit pour ces deux chiralités possibles, qu'on qualifiera simplement de paroi de Bloch.

En comparant quantitativement les cartes de champ calculées (figure 3.9d) à l'image mesurée (figure 3.9b), on trouve que l'hypothèse d'une paroi de Bloch est celle qui reproduit le mieux les données expérimentales. Cela apparaît de manière plus claire encore en prenant une coupe à travers la paroi, au centre de la piste (figure 3.9e). Le profil du champ mesuré est en bon accord avec celui prédit pour une paroi de Bloch, et au contraire dévie significativement de celui prédit pour une paroi de Néel, la différence étant bien supérieure à l'erreur expérimentale.

Pour cet échantillon de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, les parois de domaine semblent donc être de type Bloch. Autrement dit, l'angle ψ_m qui caractérise la nature de la paroi est tel que $|\psi_m| \approx \pi/2$. Pour donner un intervalle de confiance pour l'angle ψ_m , nous avons analysé en détail l'influence des incertitudes sur les paramètres utilisés dans le calcul (cf. annexe B). Cela nous permet d'estimer une erreur standard σ_f sur le déplacement Zeeman prédit, qui s'écrit

$$\sigma_f = \frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} \sqrt{\sigma_{B^\perp}^2 + \cos^2 \psi_m \sigma_{B^\parallel}^2} . \quad (3.26)$$

Dans cette formule, σ_{B^\perp} et σ_{B^\parallel} sont les erreurs absolues sur les contributions $B_{\text{NV}}^\perp = |\mathbf{B}^\perp \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$ et $B_{\text{NV}}^\parallel = |\mathbf{B}^\parallel \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$ du champ projeté selon l'axe NV, respectivement.

Ces erreurs absolues sont reliées aux erreurs relatives ϵ_{B^\perp} et ϵ_{B^\parallel} selon $\sigma_{B^\perp} = \epsilon_{B^\perp} B_{\text{NV}}^\perp$ et $\sigma_{B^\parallel} = \epsilon_{B^\parallel} B_{\text{NV}}^\parallel$. Comme expliqué dans l'annexe B, l'erreur ϵ_{B^\perp} est faible car B_{NV}^\perp est directement relié au champ mesuré sur le bord de la piste de calibration, et est donc peu sensible aux incertitudes sur les paramètres intermédiaires. Dans l'exemple de la figure 3.9e, on trouve $\epsilon_{B^\perp} \approx 1.5\%$.

En revanche, l'incertitude ϵ_{B^\parallel} est plus importante car B_{NV}^\parallel est proportionnel à la largeur de paroi Δ_p , laquelle n'est pas connue de manière précise du fait de la grande incertitude sur la valeur de la constante d'échange A . Dans notre exemple, basé sur l'intervalle $A = 10 - 30$ pJ/m pour la constante d'échange [172, 173], on estime une largeur de paroi $\Delta_p = 20 \pm 5$ nm, et une incertitude relative sur la prédiction du champ $\epsilon_{B^\parallel} \approx 25\%$.

Ces incertitudes sont matérialisées par les nappes colorées dans la figure 3.9e, qui représentent l'intervalle de confiance $[\Delta f_{\text{NV}} - \sigma_f, \Delta f_{\text{NV}} + \sigma_f]$. On peut en déduire un intervalle de confiance pour $\cos \psi_m$, défini comme la gamme de valeurs de $\cos \psi_m$ pour laquelle les données restent dans l'intervalle $[\Delta f_{\text{NV}} - \sigma_f, \Delta f_{\text{NV}} + \sigma_f]$, où Δf_{NV} et σ_f dépendent de ψ_m . D'après la figure 3.9e, on trouve ainsi $|\cos \psi_m| < 0.07$. Cet intervalle peut également être traduit en un intervalle pour l'intensité de l'interaction DM en utilisant l'équation (3.13), ce qui donne ici $|D_{\text{DM}}| < 0.01$ mJ/m². Il n'y a donc pas de signature de l'interaction DM dans cet échantillon.

Analyse d'une seconde paroi

Afin de confirmer cette conclusion, nous avons imagé une seconde paroi dans la même piste magnétique. Celle-ci est visible en même temps que la première paroi dans l'image iso-champ de la figure 3.10b, l'image topographie correspondante étant montrée dans la figure 3.10a. Les deux parois sont séparées par une distance suffisamment grande ($\approx 4 \mu\text{m}$) pour que le recouvrement des champs de fuite puisse être ignoré.

La carte de champ de cette seconde paroi est montrée, avec la simulation d'une paroi de Bloch, dans la figure 3.10c. L'angle d'inclinaison est estimé à $\phi_p = -1 \pm 1^\circ$. La figure 3.10d compare le profil du champ mesuré à travers la paroi avec les simulations. À l'instar de la première paroi, les données sont cohérentes avec une configuration purement de type Bloch, et indiquent une limite supérieure pour l'interaction DM de $|D_{\text{DM}}| < 0.01 \text{ mJ/m}^2$.

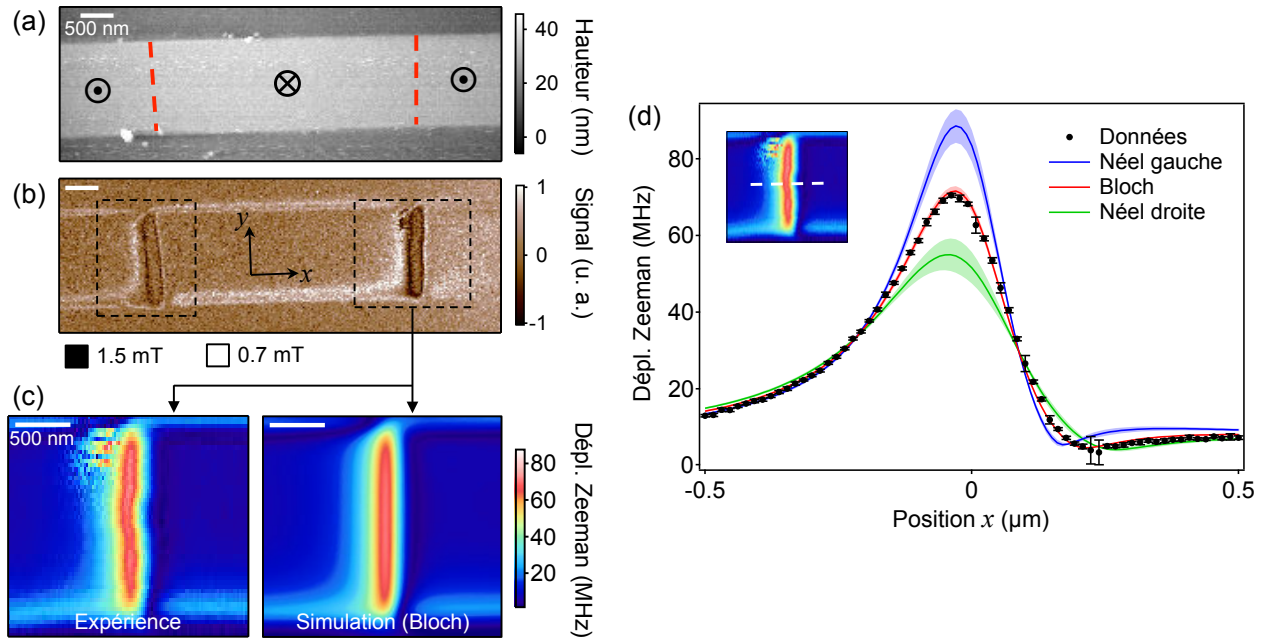


FIGURE 3.10 – (a) Image AFM de la piste de $\text{Ta}|\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1 \text{ nm})|\text{MgO}$. (b) Image iso-champ correspondante, révélant deux parois de domaine distantes d'environ $4 \mu\text{m}$ l'une de l'autre. La paroi de gauche est celle imagée dans la figure 3.9b. (c) Cartes de champ mesurée (image de gauche) et simulée (image de droite) correspondant à la paroi de droite. (d) Coupes prises à travers la paroi. Les nappes colorées sont les intervalles de confiance à $\pm 1\sigma_f$. Le centre NV est orienté selon $(\theta = 62^\circ, \phi = -25^\circ)$, et la hauteur de vol extraite de la calibration (figure 3.6b) est $d = 122.9 \pm 3.1 \text{ nm}$.

Mesures vectorielles

Pour les mesures présentées dans les figures 3.9 et 3.10, le centre NV a un axe de quantification tel que $(\theta = 62^\circ, \phi = -25^\circ)$. Nous avons répété ces mesures, c'est-à-dire l'étape de calibration suivie de l'imagerie de la paroi, en utilisant d'autres axes de projection. La figure 3.11 montre les cartes de champ enregistrées au-dessus d'une même paroi (celle de gauche dans la figure 3.10b) avec quatre axes NV différents. On rappelle que le

déplacement Zeeman mesuré est relié au champ magnétique en première approximation par la formule $\Delta f_{\text{NV}} \approx g_{\text{NV}} \mu_B B_{\text{NV}} / h$, où $B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}|$ est la projection du champ sur l'axe NV. Autrement dit, les images de la figure 3.11 sont essentiellement des cartes de champ montrant la composante B_{NV} .

D'après l'équation (3.17), le champ généré par la paroi de domaine comprend deux composantes, une composante planaire B_x de profil lorentzien selon x , et une composante perpendiculaire B_z de profil "dispersif", qui est la dérivée d'une fonction lorentzienne. De même, les bords de la piste produisent ici une composante B_y de profil lorentzien selon y et une composante B_z de profil dispersif (cf. équation (3.21)). Selon l'orientation de l'axe NV, les images font donc apparaître différentes combinaisons de ces quatre contributions.

Dans les figures 3.11a à 3.11c, l'axe NV est approximativement parallèle au plan xy . Par conséquent, on voit essentiellement sur les images le profil lorentzien du champ de la paroi (B_x), ainsi que celui des bords de la piste (B_y). Selon l'angle azimutal ϕ , l'amplitude relative de ces deux composantes B_x et B_y varie. Ainsi, le champ des bords et de la paroi apparaissent avec une amplitude comparable dans la figure 3.11a, tandis que le champ de la paroi domine dans la figure 3.11b, et enfin dans la figure 3.11c c'est celui des bords qui domine. Lorsque l'axe NV a une composante significative selon z , on voit apparaître en

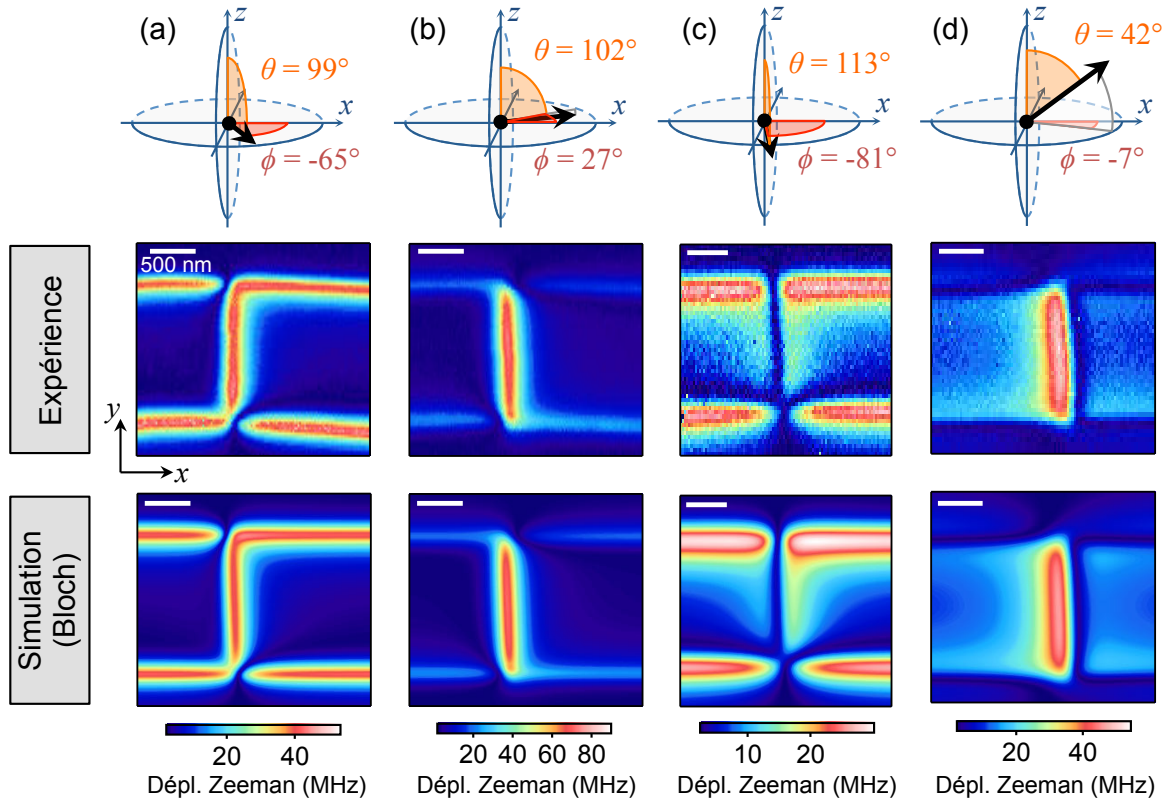


FIGURE 3.11 – Images du champ de fuite d'une même paroi (celle de gauche dans la figure 3.10b) obtenues avec différents orientations du centre NV. En-dessous de chaque image expérimentale est montrée la simulation correspondante, en supposant une paroi de type Bloch. Les angles sphériques (θ, ϕ) caractérisant l'axe de projection sont indiqués au-dessus de chaque image. La hauteur de vol d , déduite de mesures de calibration, vaut ≈ 116 nm (a), 122 nm (b), 195 nm (c) et 178 nm (d).

plus le profil dispersif du champ des bords et de la paroi (B_z). C'est le cas notamment dans la figure 3.11d, où la décroissance plus lente du profil dispersif est clairement visible. On voit également ce profil dans la figure 3.11c au-dessus de la paroi, qui apparaît alors comme une ligne de champ nul.

Dans tous les cas, les simulations sous l'hypothèse d'une paroi de Bloch donnent un très bon accord avec les données, et aucune déviation par rapport à cette configuration au-delà de l'erreur expérimentale n'est décelable. Ces expériences non seulement confirment la robustesse de la méthode pour déterminer la nature d'une paroi, mais illustrent aussi une caractéristique essentielle de la microscopie à centre NV, qui permet des mesures vectorielles et quantitatives du champ de fuite d'un échantillon, lesquelles peuvent ensuite être confrontées à des modèles théoriques.

Étude d'une couche magnétique de composition stœchiométrique différente

Nous avons ensuite étudié un échantillon similaire au précédent mais de composition stœchiométrique différente, en particulier avec une plus grande proportion de Fe : ici la couche magnétique est $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$, contre $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ précédemment. Récemment, Torrejon et collègues ont en effet observé par des expériences de déplacement de parois sous courant, dans des couches de $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$, une signature de la présence d'une interaction DM, dont l'intensité devrait être suffisante pour être observable par microscopie à centre NV [167].

L'empilement est le même que précédemment, à savoir $\text{Ta}(5)|\text{CoFeB}(1)|\text{MgO}(2)|\text{Ta}(5)$, et le film est structuré en un ensemble de pistes comme montré dans la figure 3.12a. Les dimensions finales des pistes sont $\delta d_m = 54 \pm 5$ nm et $w_c = w = 1000 \pm 20$ nm. La calibration sur une piste uniformément aimantée (figure 3.12b) fournit $d = 156.6 \pm 4.2$ nm et $I_s = 889 \pm 27$ μA . Cette dernière valeur, correspondant à $M_s \approx 8.9 \cdot 10^5$ A/m, est en bon accord avec celles mesurées par d'autres méthodes [169]. Par ailleurs, basé sur la gamme $A = 10 - 30$ pJ/m pour la constante d'échange et sur le champ d'anisotropie effective $\mu_0 H_{k,\text{eff}} = 45$ mT [171], on trouve une largeur de paroi $\Delta_p = 30 \pm 8$ nm.

La figure 3.12 montre les résultats obtenus pour des parois de domaine situées dans deux pistes distinctes, d'inclinaison $\phi_p = 0 \pm 1^\circ$ (figures 3.12c et 3.12d) et $\phi_p = 3 \pm 1^\circ$ (figures 3.12e et 3.12f). L'axe NV a ici une importante composante selon z , ce qui explique la ligne d'annulation du champ près de la paroi, ainsi que la décroissance lente du champ de la paroi et des bords. Les erreurs relatives des prédictions théoriques sont estimées à $\epsilon_{B\perp} \approx 2.1\%$ et $\epsilon_{B\parallel} \approx 27\%$. Comme le montre la figure 3.12g, l'accord entre l'expérience et la simulation d'une paroi de Bloch est très bon. Il n'y a donc pas non plus dans cet échantillon de signature de la présence d'une interaction DM, avec une limite supérieure $|D_{\text{DM}}| < 0.02$ mJ/m².

L'échantillon étudié ici n'est pas exactement identique à ceux étudiés dans la référence [167]. En particulier, les épaisseurs des couches adjacentes de Ta sont différentes, et une étape de recuit (300°C pendant 2 h sous vide) est appliquée après le dépôt alors que notre échantillon n'a pas subi de traitement thermique particulier. Nos résultats motivent donc une étude systématique de l'influence de la composition exacte de l'empilement – stœchiométrie, épaisseur des couches, structure cristalline, etc. – sur la nature des parois et l'intensité de l'interaction DM.

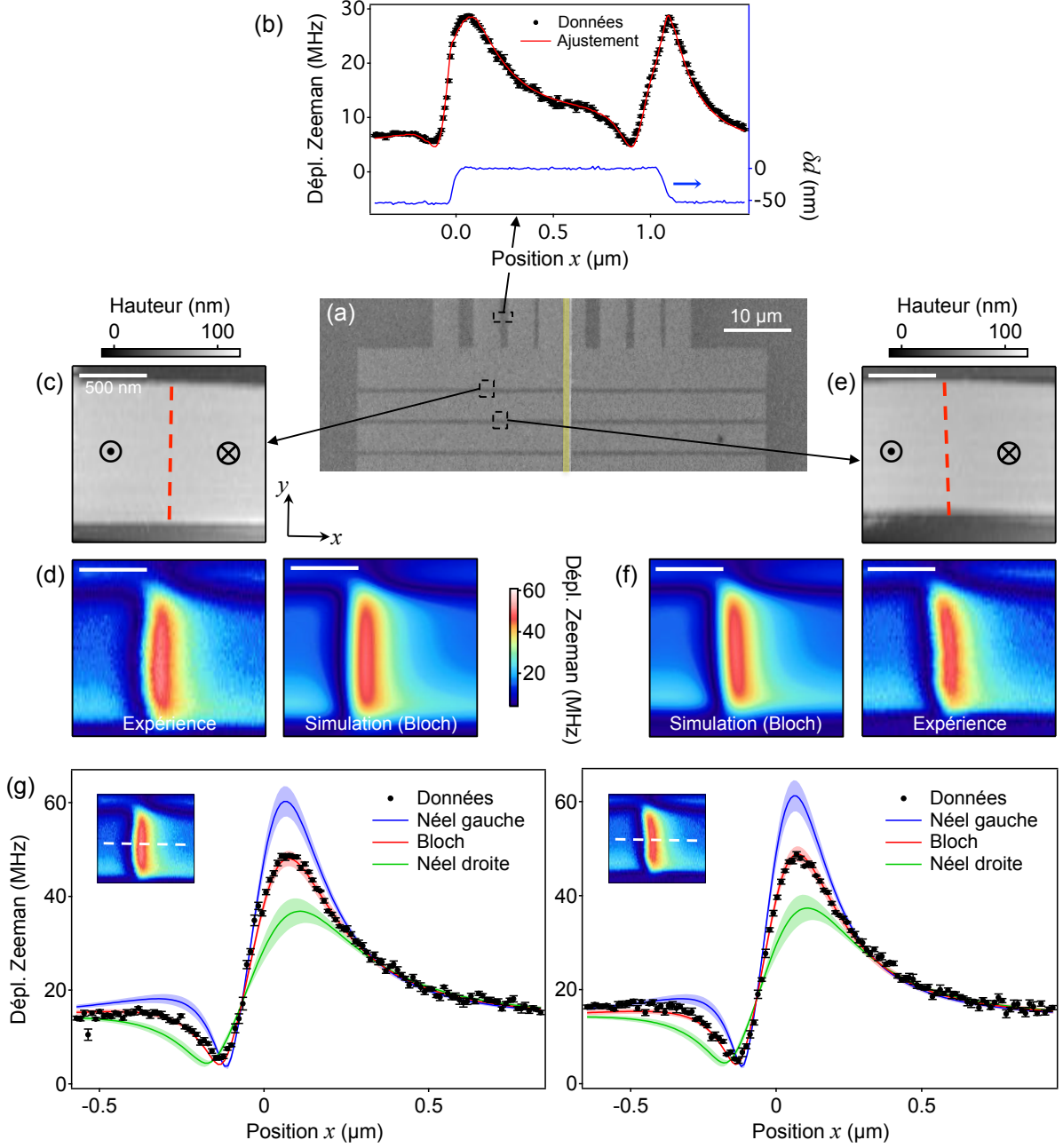


FIGURE 3.12 – Analyse des données obtenues sur un échantillon de $\text{Ta}|\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}(1\text{ nm})|\text{MgO}$ avec un centre NV orienté selon $(\theta = 134^\circ, \phi = 28^\circ)$. (a) Image de microscopie électronique à balayage de l'échantillon après structuration, montrant les différentes pistes utilisées pour la calibration et l'imagerie des parois. La piste colorée en jaune est l'antenne rf. (b) Coupe de calibration prise sur une piste uniformément aimantée. (c,d) Image AFM d'une piste contenant une paroi de domaine (c) et carte de champ correspondante (d). (e,f) Image AFM (e) et carte de champ correspondante (f) montrant une paroi dans une autre piste magnétique. (g) Coupes prises à travers la paroi (d) dans le graphe de gauche et la paroi (f) dans le graphe de droite. Les nappes colorées sont les intervalles de confiance à $\pm 1\sigma_f$.

3.3.4 Résultats sur un échantillon de Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x

Enfin, nous avons étudié un échantillon de Pt|Co|AlO_x réalisé par Gilles Gaudin (Spin-tech, Grenoble) et nucléé par Stanislas Rohart (Laboratoire de Physique des Solides, Orsay) [39]. Il a été proposé par plusieurs auteurs que dans ce type de film, les parois sont de type Néel, stabilisées par une forte interaction DM à l'interface Pt|Co [150, 152, 174].

Le film est basé sur un empilement de Pt(3)|Co(0.6)|Al(1.6) déposé par pulvérisation cathodique sur un substrat de silicium oxydé. Après le dépôt, la couche d'aluminium est oxydée par exposition à un plasma oxygène, formant un empilement Pt(3)|Co(0.6)|AlO_x(2). La couche magnétique est ensuite structurée en deux ensembles de pistes, comme précédemment (figure 3.12a). Les dimensions finales des pistes étudiées sont $\delta d_m = 25 \pm 3$ nm, $w_c = 980 \pm 20$ nm et $w = 470 \pm 20$ nm. La calibration sur une piste uniformément aimantée (figure 3.13a) fournit $d = 119.0 \pm 3.4$ nm et $I_s = 671 \pm 18$ μ A. Cette dernière valeur, correspondant à $M_s \approx 1.12 \cdot 10^6$ A/m, est en bon accord avec celle trouvée dans la littérature [131]. Par ailleurs, basé sur la gamme $A = 10 - 30$ pJ/m pour la constante d'échange et sur le champ d'anisotropie effective $\mu_0 H_{k,\text{eff}} = 920$ mT [131], la largeur de paroi vaut $\Delta_p = 6.0 \pm 1.6$ nm.

La figure 3.13 montre les résultats obtenus pour des parois de domaine situées dans trois pistes distinctes. L'inclinaison moyenne des parois est $\phi_p = 6 \pm 2^\circ$ pour la première (figure 3.13c), $\phi_p = 4 \pm 2^\circ$ pour la deuxième (figure 3.13e) et $\phi_p = 0 \pm 2^\circ$ pour la troisième (figure 3.13f). Les erreurs relatives sont estimées à $\epsilon_{B\perp} \approx 2.1\%$ et $\epsilon_{B\parallel} \approx 23\%$. Dans les trois cas, la comparaison des données aux simulations (figures 3.13d à 3.13f) indiquent que les parois sont de type Néel avec une chiralité gauche. On peut extraire des données et des incertitudes une limite inférieure pour l'intensité de l'interaction DM, $|D_{\text{DM}}| > 0.1$ mJ/m², avec D_{DM} de signe négatif – correspondant à la chiralité gauche – selon la convention de la référence [160].

Ce résultat est cohérent avec les observations expérimentales de Pizzini et collègues effectuées dans des échantillons similaires [174]. Il a en effet été observé un effet de nucléation de parois dépendant du champ planaire, dont l'analyse suggère que les parois sont de type Néel gauche, stabilisées par une interaction DM de constante estimée à $D_{\text{DM}} \approx -2.2$ mJ/m². De même, le déplacement très rapide des parois sous courant, dans la direction opposée au flux des électrons [132], peut être interprété comme le résultat du couple induit par l'effet Hall de spin dans la couche de Pt à condition que les parois soient de type Néel gauche [148, 152], stabilisées par une interaction DM de constante estimée à $D_{\text{DM}} \approx -2.4$ mJ/m² [150]. Une telle valeur de D_{DM} expliquerait aussi qualitativement les mesures de résistivité électrique et de dépiégeage de parois en fonction du champ planaire réalisées récemment dans un échantillon de Pt|Co(0.4 nm)|AlO_x [147].

Nos expériences confirment donc *de manière directe* que les parois de domaine sont de type Néel gauche dans Pt|Co|AlO_x, ce qui suggère l'existence d'une interaction DM significative à l'interface Pt|Co. Il est important de noter que notre méthode ne suppose aucune hypothèse sur la dynamique de la paroi sous courant et/ou sous champ. La nature de la paroi est mesurée au repos, à partir de simples considérations sur le champ de fuite statique.

Effets additionnels d'une forte interaction Dzyaloshinskii-Moriya

Jusqu'à maintenant, nous avons uniquement considéré, par simplicité et afin d'éviter d'introduire des paramètres supplémentaires, l'effet de l'interaction DM sur l'angle ψ_m de l'aimantation planaire de la paroi. En faisant cela, deux autres effets de l'interaction DM

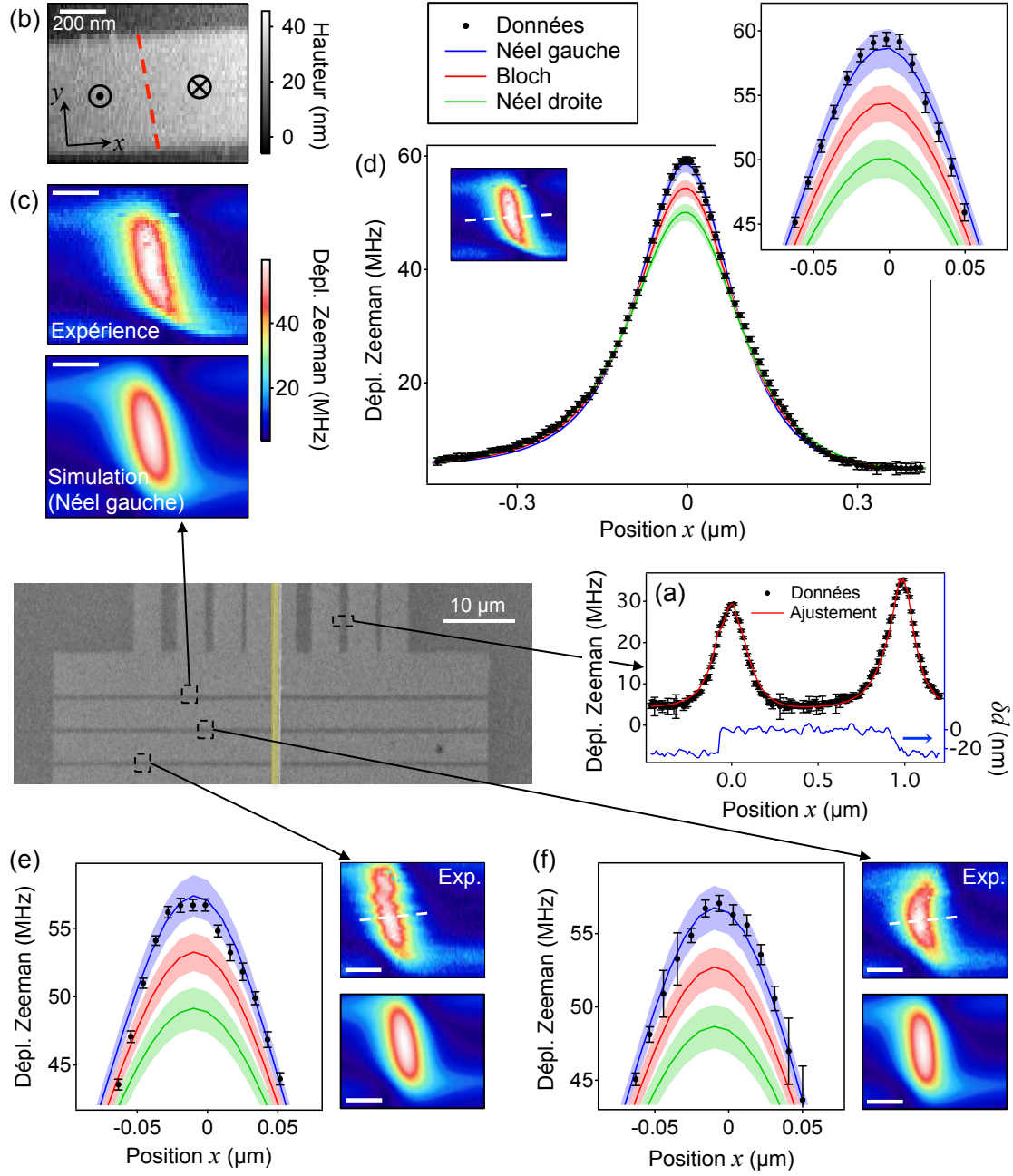


FIGURE 3.13 – Analyse des données obtenues sur un échantillon de $\text{Pt}|\text{Co}(0.6 \text{ nm})|\text{AlO}_x$ avec un centre NV orienté selon $(\theta = 87^\circ, \phi = 23^\circ)$. (a) Coupe de calibration prise sur une piste uniformément aimantée. (b) Image AFM d'une piste contenant une paroi de domaine. (c) Carte de champ correspondante. La simulation montrée en-dessous de l'image expérimentale correspond à une paroi de Néel gauche avec $\phi_p = 6^\circ$. (d) Coupes prises à travers la paroi dans (c). L'insert est un agrandissement près du maximum. Les nappes colorées sont les intervalles de confiance à $\pm 1\sigma_f$ (cf. équation (3.26)). (e, f) Résultats obtenus avec le même centre NV pour des parois situées dans deux autres pistes magnétiques. Barres d'échelle : 200 nm.

ont été négligés.

1. L'interaction DM induit une rotation de l'aimantation près des bords de la couche magnétique [160].
2. Le profil de paroi en présence de l'interaction DM dévie légèrement par rapport au profil standard $m_z(x) = -\tanh(x/\Delta_p)$ [152].

Le premier effet modifie le champ de fuite au-dessus de la piste de calibration, tandis que le second affecte le champ au-dessus de la paroi. Nous allons quantifier ces effets dans le cas de Pt|Co|AlO_x, pour lequel l'interaction DM est possiblement intense.

L'angle maximum de rotation sur les bords est fixé par le ratio $D_{DM}/D_{c,2}$ [160], où $D_{c,2}$ est la valeur critique de l'interaction DM au-delà de laquelle l'énergie de paroi devient négative (cf. § 3.2.3). D'après les estimations données dans les références [150] et [174], ce ratio vaut environ 0.7 pour Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x. En prenant $D_{DM} = 0.7D_{c,2} \approx -2.5$ mJ/m² avec les paramètres de notre échantillon, il est prédit que la rotation de l'aimantation sur les bords atteint $\approx 20^\circ$ [160], dans le sens schématisé dans la figure 3.14a. En incluant cette rotation dans les simulations, nous trouvons que le champ maximum au-dessus du bord est augmenté de $\approx 1.8\%$ dans les conditions de la figure 3.13a (cf. figure 3.14a). Comme cette correction est de l'ordre de notre erreur de mesure, la rotation de l'aimantation sur les bords induit par l'interaction DM ne peut pas être détectée directement dans notre expérience. En ajustant à nouveau les données de la figure 3.13a, le résultat pour d et I_s est modifié de manière similaire. On trouve $d = 121.0 \pm 3.4$ nm et $I_s = 670 \pm 17$ μ A si une interaction DM de constante $D_{DM} = -2.5$ mJ/m² est incluse, contre $d = 119.0 \pm 3.4$ nm et $I_s = 671 \pm 18$ μ A sans interaction DM. La différence relative

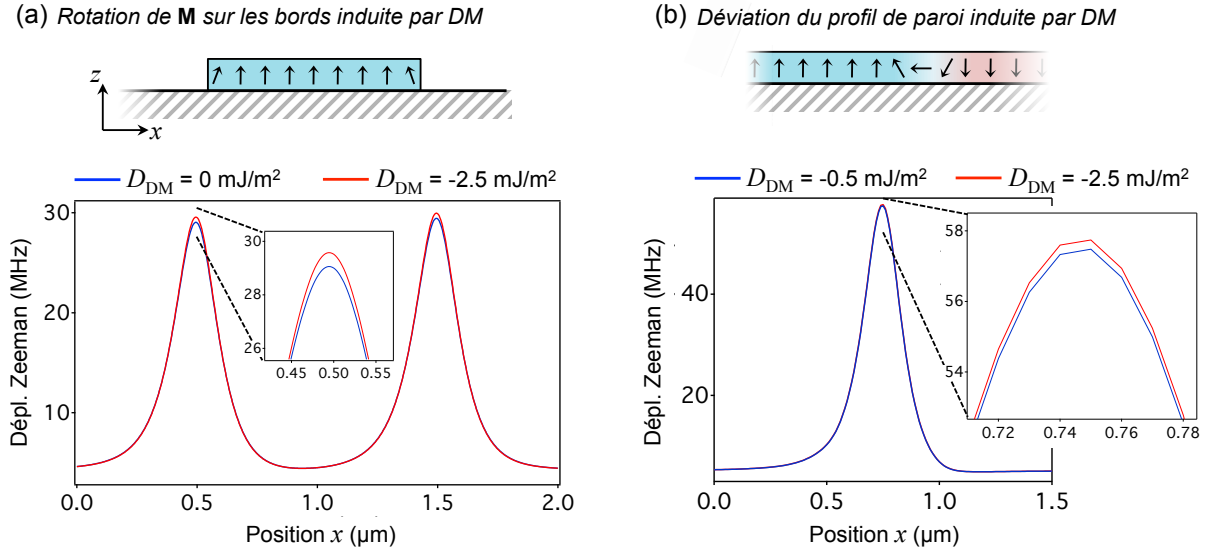


FIGURE 3.14 – (a) En présence d'une forte interaction DM, l'aimantation dévie de la direction z près des bords de la piste. Le graphe montre le déplacement Zeeman au-dessus d'une piste, calculé dans les mêmes conditions que dans la figure 3.13a, pour deux valeurs différentes de D_{DM} . (b) L'interaction DM fait aussi dévier le profil d'aimantation de la paroi par rapport au profil standard $m_z(x) = -\tanh(x/\Delta_p)$. Le graphe montre le déplacement Zeeman au-dessus d'une paroi de domaine, calculé dans les mêmes conditions que dans la figure 3.13d, pour deux valeurs différentes de D_{DM} .

est inférieure à l’incertitude globale sur les prédictions (cf. annexe B), par conséquent elle peut être négligée sans que cela n’affecte l’interprétation des données mesurées sur les parois de domaine.

Pour quantifier le second effet, nous avons réalisé le calcul OOMMF avec deux valeurs différentes de D_{DM} qui stabilisent une paroi de Néel gauche : $D_{\text{DM}} = -0.5 \text{ mJ/m}^2$, comme utilisé pour toutes les simulations dans les sections 3.3.3 et 3.3.4, et $D_{\text{DM}} = -2.5 \text{ mJ/m}^2$. Le calcul du champ de fuite dans les conditions de la figure 3.13 montre une augmentation du champ maximum de $\approx 0.5\%$ pour l’interaction DM la plus forte (figure 3.14b). À nouveau, cette correction est bien en-dessous de l’incertitude globale (cf. annexe B).

En outre, il est intéressant de noter que ces deux effets ont tendance à se compenser – au moins partiellement – puisque le premier tend à augmenter la distance d estimée, et donc diminuer le champ prédit au-dessus de la paroi, tandis que le second tend au contraire à augmenter le champ prédit. Finalement, nous concluons que négliger les effets additionnels d’une forte interaction DM mène à des prédictions pour le champ de fuite d’une paroi de Néel qui sont correctes à l’incertitude près, même pour une constante DM aussi grande que 70% de $D_{c,2}$. On remarquera enfin que les prédictions dans le cas de la paroi de Bloch ne sont de toutes façons pas affectées par ces considérations, puisque le cas Bloch implique une interaction DM très faible telle que $D_{\text{DM}} \ll D_{c,1}$.

Conclusion

Dans cette section, nous avons introduit une méthode permettant de déterminer la nature des parois de domaine dans des couches ultraminces à aimantation perpendiculaire. Nous avons trouvé que les parois sont de type de Bloch dans nos films de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, comme le prédit le modèle magnétostatique le plus simple, mais de type Néel de chiralité gauche dans un film de Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x. Ce résultat fournit une preuve expérimentale directe de l’existence d’un mécanisme qui stabilise des parois de Néel d’une chiralité particulière, en l’occurrence l’interaction DM interfaciale.

Selon les théories actuelles [152], la présence d’une forte interaction DM stabilisant des parois de Néel serait la clé de l’explication du déplacement particulièrement rapide des parois dans des échantillons tels que Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x [132]. Or c’est principalement ce phénomène qui est à l’origine de l’attrait des systèmes magnétiques ultraminces pour la réalisation de dispositifs spintroniques rapides et à faible consommation d’énergie, tels que la “racetrack memory”. Par conséquent, la capacité à déterminer la nature d’une paroi au repos, de manière directe et indépendamment de toute hypothèse quant à la dynamique des parois sous l’effet d’un courant électrique ou d’un champ magnétique, est un atout crucial pour pouvoir optimiser les matériaux et processus en vue des applications. C’est également un outil intéressant du point de vue fondamental, puisqu’il pourrait aider, en modifiant les matériaux de différentes manières, à élucider l’origine de l’interaction DM.

3.4 Étude de la dynamique d’une paroi de domaine sous l’effet d’un chauffage local

Un autre aspect des parois de domaine, qui est très important à la fois du point de vue fondamental et dans le contexte des applications potentielles, est la question de leur stabilité, ainsi que de la capacité à les positionner le long d’une piste avec une précision

arbitraire. Cette question est notamment liée à l'influence des défauts structuraux dans la piste magnétique, et à celle de la température.

Nous avons déjà remarqué plus haut que nos images de microscopie à centre NV révèlent des parois qui ne sont pas parfaitement droites ni parfaitement perpendiculaire à l'axe de la piste. Autrement dit, les parois n'ont pas la forme qui minimiserait l'énergie dans une piste magnétique idéale, sans défaut. De plus, nous avons parfois observé, lors d'acquisitions d'images de champ avec le microscope à centre NV, des “sauts” de la paroi entre deux ou plusieurs positions différentes. Un exemple de cette observation est montré dans la figure 3.15b, la figure 3.15a montrant l'image AFM correspondante. Au cours de l'acquisition, la paroi semble en effet “sauter” plusieurs fois d'une position initiale à une autre, située environ 300 nm plus loin, avant de revenir à sa position initiale. Cette observation suggère deux conséquences remarquables dans le cas présent.

1. La paroi a une stabilité limitée, puisqu'elle ne reste pas dans une position donnée plus longtemps que quelques minutes.
2. La paroi ne peut pas prendre toutes les positions possibles, puisqu'elle effectue ici des sauts de 300 nm d'un seul coup.

C'est l'objet de cette section que d'étudier ces phénomènes. En particulier, nous allons utiliser le microscope à centre NV pour mesurer précisément la position et la forme d'une paroi, puis nous étudierons la stabilité et la dynamique des parois sous l'effet d'une perturbation locale [40]. Pour cela, nous utiliserons un échantillon de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO identique à celui étudié précédemment, avec la composition stœchiométrique $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ (cf. § 3.3.3). De plus, puisque nous sommes intéressés par des phénomènes dynamiques, nous utiliserons la technique d'imagerie iso-champ plutôt que la cartographie complète du champ, afin d'acquérir les images aussi rapidement que possible.

Dans un premier temps, nous décrirons une procédure d'ajustement des données qui permet d'extraire la forme et la position des parois (§ 3.4.1). Puis nous analyserons la dynamique des sauts d'une paroi, en fonction notamment de l'intensité du laser de mesure (§ 3.4.2). À l'aide d'un modèle théorique, nous montrerons que ces sauts sont accélérés par un effet de chauffage local induit par le laser (§ 3.4.3). Enfin, nous exploiterons ce

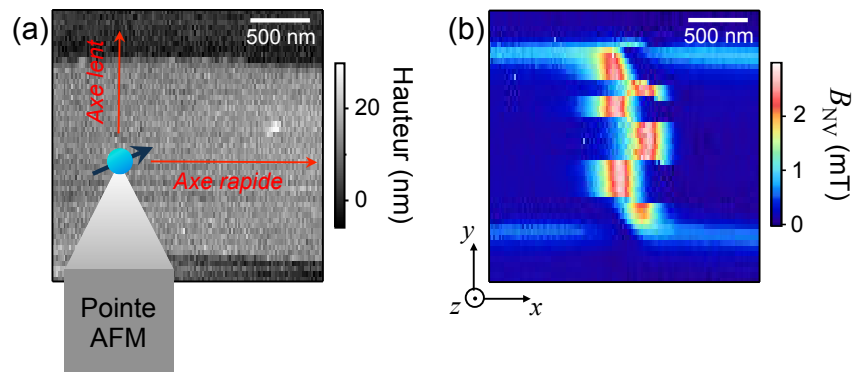


FIGURE 3.15 – Image AFM (a) et carte de champ B_{NV} correspondante (b) obtenue sur une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO. La hauteur de vol est ≈ 120 nm, et le centre NV est orienté selon $(\theta = 102^\circ, \phi = 27^\circ)$. En (a), la pointe AFM et le centre NV sont représentés de manière schématique pour indiquer les axes lents et rapides du balayage. La paroi semble “sauter” entre deux positions distinctes durant l’acquisition.

nouveau degré de contrôle pour déplacer la paroi à l’aide du laser, et explorer ainsi le paysage énergétique de la paroi (§ 3.4.4).

3.4.1 Reconstruction du profil de position d’une paroi

Dans un échantillon parfait, les parois de domaine devraient être parfaitement droites et perpendiculaires au grand axe de la piste pour minimiser leur coût énergétique. Pourtant, nous avons constaté depuis le début de ce chapitre que dans les échantillons réels, les parois ne suivent pas parfaitement cette forme idéale. Cela est dû à la présence de défauts structuraux ou de fabrication dans la piste magnétique, qui modifient localement le paysage énergétique, créant des “sites de piégeage” pour les parois.

En conséquence, une paroi ne peut se trouver, à l’équilibre, que dans un de ces sites de piégeage, auquel correspond un certain “profil spatial de position”. Pour une paroi située dans une piste dont le grand axe est parallèle à x , ce profil de position est caractérisé par la fonction $x_p = f(y)$, où $y \in [-w/2, w/2]$ et w est la largeur de la piste (figure 3.16a). Ce profil de position contient non seulement la “forme” de la paroi, qui renseigne sur les défauts se trouvant à proximité, mais aussi sa position moyenne le long de la piste, qui est le paramètre important pour les applications. Nous allons présenter une méthode pour estimer ce profil de position à partir des images de microscopie à centre NV.

Afin de minimiser le temps d’acquisition, nous enregistrerons non pas des cartes de champ mais des images iso-champ différentielles, c’est-à-dire des images révélant deux contours iso-champ (cf. § 2.3.2). La figure 3.16b montre quelques images iso-champ de parois de domaine dans la piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO, où les contours correspondent ici à $B_{NV} = 0.7$ mT et $B_{NV} = 1.5$ mT.

Pour extraire le profil de position d’une paroi $x_p(y)$ à partir de son image iso-champ, il nous faut être capable de simuler l’image pour un profil test, puis ajuster ce profil afin que l’image simulée reproduise au mieux les données. Par rapport aux simulations réalisées précédemment (cf. § 3.3.3), la seule différence a priori est qu’il faut en plus appliquer la réponse optique du centre NV à la carte de champ B_{NV} afin d’obtenir l’image iso-champ, comme expliqué dans l’annexe A (cf. § A.1.3).

Pour réaliser l’ajustement, le profil spatial de position du centre de la paroi, c’est-à-dire la fonction $x_p(y)$, doit être ramené à un nombre fini de paramètres ajustables. Dans notre exemple, la piste de largeur $w = 1500$ nm est divisée en $N = 15$ bandes de largeur $w/N = 100$ nm, comme schématisé dans la figure 3.16a. Une paroi droite, parallèle à l’axe y et centrée en $x = x_i$, est placée dans chaque bande i . Les paramètres ajustables sont donc l’ensemble de positions $\{x_i\}_{i=1..N}$.

En principe, il suffit donc d’ajuster les positions $\{x_i\}$ pour minimiser l’erreur entre l’image simulée et l’image expérimentale. Cependant, il est important de veiller d’abord à minimiser le temps de calcul d’une image. En effet, les simulations réalisées dans la section 3.3.3 nécessitent typiquement plusieurs heures de calcul, qui servent pour une moitié à calculer la distribution d’aimantation d’équilibre $\mathbf{M}(x, y)$ avec le logiciel OOMMF, et pour l’autre moitié à calculer le champ de fuite $\mathbf{B}(x, y)$ à une distance d . Une telle durée est bien trop longue pour envisager l’ajustement d’un paramètre.

Pour réduire ce temps de calcul, nous allons simplifier le problème en ignorant la structure interne de la paroi, qui est une paroi de Bloch d’après les résultats de la section 3.3.3. Cela revient à considérer la paroi comme abrupte, séparant deux domaines semi-infinis aimantés uniformément (figure 3.16a). Comme discuté dans l’annexe A, cette approximation introduit une erreur de quelques pourcents, ce qui n’a pas d’effet significatif sur le

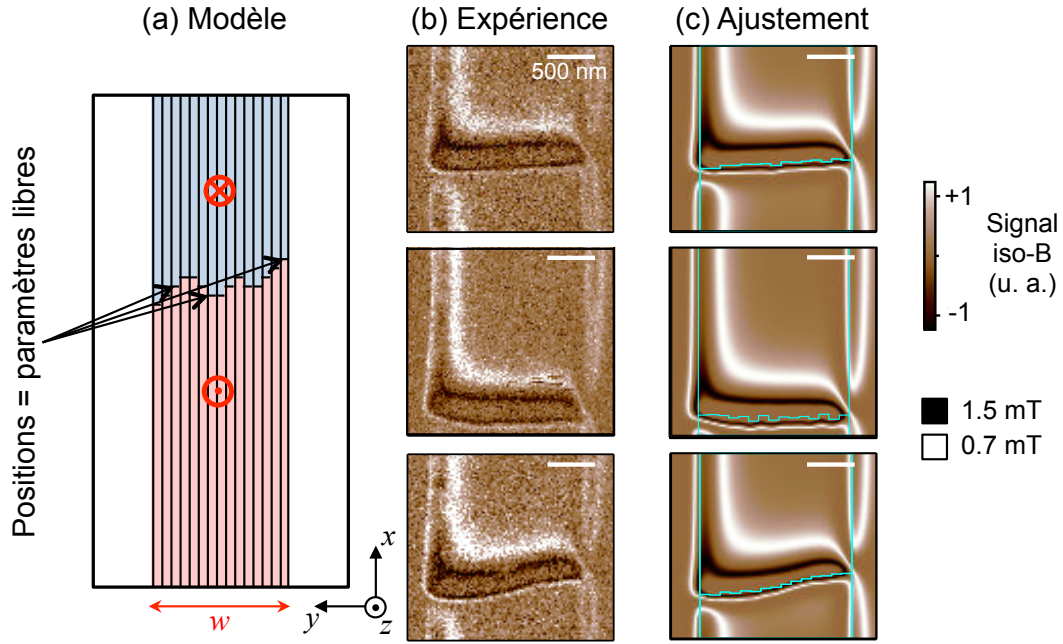


FIGURE 3.16 – (c) Pour simuler les données, la piste magnétique est décomposée en un ensemble de N fines bandes comprenant chacune une paroi abrupte, droite et horizontale. (b) Images iso-champ de trois parois de domaine différentes dans une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO. (c) Images iso-champ calculées selon le modèle (a) et ajustées aux données (b), en prenant les positions du centre des N parois comme paramètres libres. Les lignes bleues superposées aux images représentent le profil de position issu de l'ajustement, ainsi que les bords de la piste. Le centre NV est orienté selon $(\theta = 122^\circ, \phi = 45^\circ)$, et la hauteur de vol est $d \approx 110$ nm.

résultat de l'ajustement (cf. § A.3.1).

Avec ce modèle de paroi abrupt, on peut alors utiliser les formules analytiques du champ de fuite d'un domaine, données par l'équation (A.2). Il suffit ensuite de sommer les contributions des $2N$ domaines, ce qui donne la distribution du champ de fuite de la paroi, et finalement l'image iso-champ théorique. Le calcul d'une image prend quelques secondes, et il est ainsi possible d'ajuster la simulation aux données avec un temps de calcul de quelques heures.

La figure 3.16c montre le résultat des simulations ajustées aux données expérimentales de la figure 3.16b, et montre un très bon accord avec l'expérience. Le profil de position de la paroi fourni par l'ajustement est représenté en superposition des simulations dans la figure 3.16c, et diffère significativement pour les trois parois montrées en exemples. L'incertitude sur la position de chaque segment x_i est de ≈ 20 nm en moyenne (erreur standard) avec nos paramètres d'acquisition (50 ms par pixel). Cette incertitude pourrait être réduite en intégrant plus longtemps par pixel afin d'augmenter le rapport signal-sur-bruit. Précisons que x_i donne une estimation de la position de la paroi moyennée sur la largeur $w/N = 100$ nm de la bande i . Cependant, réduire cette largeur ne donnerait pas plus d'information car la hauteur de vol d , de l'ordre de 100 nm, empêche le microscope d'être sensible à des détails plus petit que d (cf. § 2.3.3). C'est d'ailleurs la raison pour laquelle nous avons choisi $N = 15$.

Notons que la même procédure d'ajustement est également applicable à une carte com-

plète de champ magnétique. Cependant, l'image iso-champ étant plus rapide à enregistrer (cf. § 2.3.2), elle est moins sensible aux dérives thermiques et fournit donc une plus grande précision dans la détermination des positions $\{x_i\}$, ce qui la rend mieux adaptée pour une caractérisation systématique de la forme des parois.

Nous allons maintenant étudier une paroi en particulier, que nous allons imager de manière répétée par imagerie iso-champ. Nous utiliserons notamment la procédure d'ajustement décrite dans cette section pour évaluer précisément les variations dans le temps du profil de position de cette paroi.

3.4.2 Observation et analyse des sauts d'une paroi entre deux sites de piégeage

Considérons l'image iso-champ située en haut dans la figure 3.16b. D'après l'ajustement (figure 3.16c), la paroi se trouve dans un site de piégeage, qu'on appellera site 1, qui incline légèrement la paroi de $\approx 3^\circ$ par rapport au profil de position "naturel", parallèle à l'axe y . En imageant cette paroi de manière "rapide" – 3 minutes d'acquisition par image – et répétée, nous avons observé des sauts de la paroi entre deux sites de piégeage, le site 1 et un second site, que l'on appellera site 2. Un "film" complet d'une série de 21 images – soit 63 minutes d'acquisition – est disponible dans la référence [175]. La figure 3.17 montre quelques unes de ces images mettant en évidence ces sauts, qui ont lieu sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de minutes.

Ce phénomène stochastique, appelé généralement effet Barkhausen, correspond à des sauts activés thermiquement au-dessus d'une barrière de potentiel. Il a déjà été observé par diverses techniques dans des couches minces ferromagnétiques [176–179]. Il est observé ici de manière directe – dans l'espace réel – dans un film ultramince, à température ambiante et sans champ magnétique externe.

Des images plus résolues des deux états de la paroi sont montrées dans les figures 3.18a et 3.18b. Les profils de position de la paroi dans chaque site, reconstruits par ajustement des données (cf. § 3.4.1), sont représentés dans la figure 3.18c. Il ressort que le site 2 est plus incliné que le site 1, et que l'espacement entre les deux sites varie de 200 nm à l'extrémité gauche de la paroi à 50 nm à l'extrémité droite.

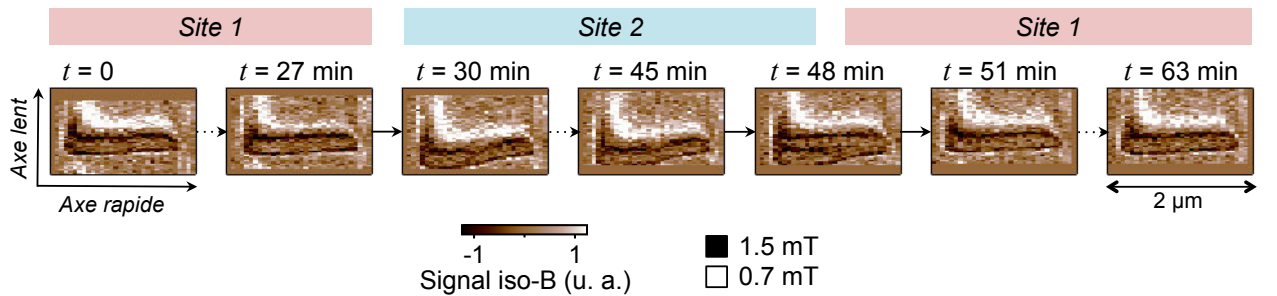


FIGURE 3.17 – Série d'images iso-champ ($2 \times 1.2 \mu\text{m}$) obtenues consécutivement. Le temps d'acquisition d'une image est de 3 minutes. Seules quelques images de la série complète sont montrées ici, mettant en évidence les sauts de la paroi du site 1 vers le site 2, puis du site 2 vers le site 1. Les images ont été corrigées des dérives thermiques de la pointe AFM par rapport à l'échantillon en corrélant les images AFM. La puissance du laser à l'entrée de l'objectif est de $400 \mu\text{W}$.

Plutôt que d'imager la paroi complète, il est possible d'observer son évolution temporelle en mesurant le signal en un point fixe de l'échantillon. Cela permet d'obtenir des traces télégraphiques comme celles de la figure 3.18d, obtenues en balayant la pointe AFM dans une petite région au-dessus du site 2. Le signal présente des variations abruptes entre

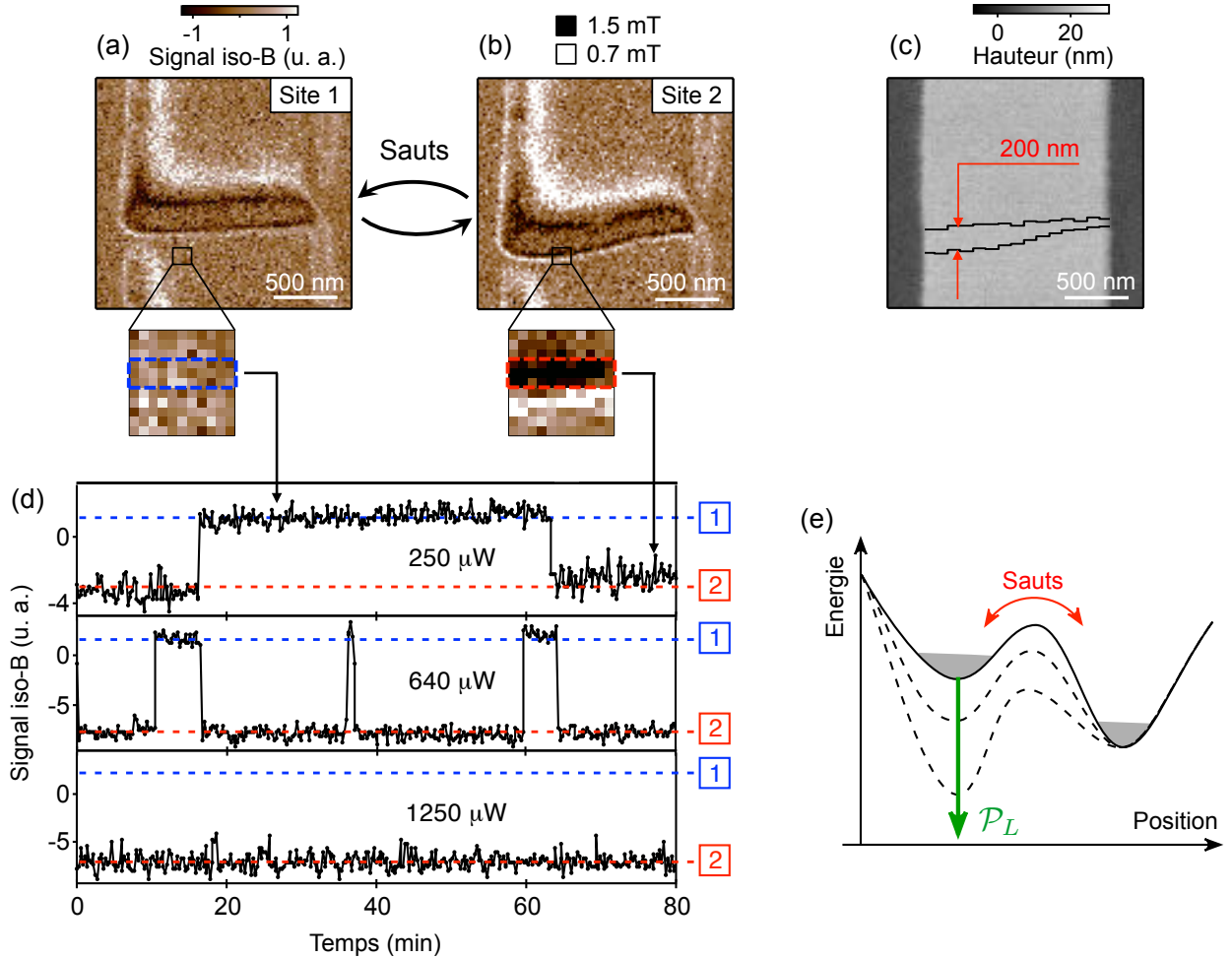


FIGURE 3.18 – (a,b) Images iso-champ de la paroi dans le site 1 (a) et dans le site 2 (b). (c) Image AFM correspondant à la même zone qu'en (a) et (b). Les lignes noires sont les profils de position reconstruits à partir de (a) et (b), indiquant que les deux sites de piégeage sont séparés de 200 nm au plus. (d) Traces télégraphiques obtenues en répétant des images de 200 x 200 nm (carrés noirs dans (a) et (b)) et en intégrant le signal dans les rectangles pointillés. Le signal est positif (resp. négatif) lorsque la paroi est dans le site 1 (resp. site 2). Les points de la trace résultante sont séparés de 10 secondes et correspondent chacun à 3 secondes d'intégration. Avant d'intégrer spatialement le signal, les images sont corrigées des dérives thermiques en corrélant les images AFM. Les trois traces correspondent à des puissances laser différentes, 250, 640 et 1250 μW de haut en bas. (e) Modèle phénoménologique proposé pour interpréter les observations. L'énergie de la paroi en fonction de sa position moyenne le long de la piste présente deux minimums locaux correspondant aux sites de piégeage 1 et 2. Le laser, focalisé sur le site 2, tend à approfondir le site 2 et à abaisser la barrière d'énergie qui sépare les deux sites, favorisant ainsi le piégeage de la paroi dans le site 2.

deux niveaux distincts, traduisant les sauts de la paroi par-dessus une barrière d'énergie.

De manière surprenante, la dynamique du processus de saut semble dépendre fortement de la puissance du laser \mathcal{P}_L qui sert à exciter le centre NV. Celui-ci est focalisé sur la pointe, qui est positionnée approximativement au-dessus du site 2 pour les mesures de la figure 3.18d. Les traces obtenues avec trois puissances laser différentes suggèrent que le temps de vie du site 2 augmente avec la puissance, tandis que celui du site 1 diminue. À la puissance maximum $\mathcal{P}_L = 1250 \mu\text{W}$, la paroi reste même dans le site 2 sans revenir vers le site 1. Aucun évènement $2 \rightarrow 1$ n'a ainsi été observé après 3 heures d'attente dans la même position. En revanche, si le laser est soudainement éteint ($\mathcal{P}_L = 0$), la paroi relaxe vers le site 1 avec un temps caractéristique de 10 minutes¹ et y reste (pas d'évènement $1 \rightarrow 2$ observé après 3 heures d'attente). On peut déduire de ces observations que, en l'absence du laser, le site 1 est thermodynamiquement stable à température ambiante, tandis que le site 2 est métastable, avec un temps de vie de 10 minutes. Quant au laser, ici focalisé sur le site 2, il tend à stabiliser la paroi dans le site 2, comme illustré schématiquement par le modèle à deux puits de potentiel proposé dans la figure 3.18e. Ce modèle et le mécanisme sous-jacent seront discutés plus en détail dans la section 3.4.3.

Mesure des taux de transition

Pour quantifier et analyser plus précisément la dynamique de la paroi sous l'effet du laser, nous avons cherché à mesurer les taux de transition de la paroi d'un site de piégeage vers l'autre, en fonction d'une part de la position de la pointe – et donc du laser, qui est toujours focalisé sur la pointe – et d'autre part de la puissance du laser \mathcal{P}_L . En particulier, nous avons examiné le cas où la pointe est positionnée essentiellement au-dessus du site 2, comme montré dans la figure 3.19a (images de gauche), et le cas où elle est placée essentiellement au-dessus du site 1, comme montré dans la figure 3.19a (images de droite). La position exacte de la pointe est choisie dans les deux cas de sorte à pouvoir déterminer sans ambiguïté, via le signal iso-champ, le site de piégeage dans lequel la paroi se trouve à un instant donné. Nous souhaitons donc mesurer les taux de transition $\Gamma_{i \rightarrow j}^k$ du site i vers le site j avec la pointe placée au-dessus du site k pour $i, j, k = 1, 2$ et $i \neq j$, soit quatre taux différents.

Étant donné que les sauts de la paroi sont des processus stochastiques, il est nécessaire d'accumuler un grand nombre d'évènements afin d'en extraire un taux caractéristique. Cela est en principe possible à partir de traces télégraphiques telles que celle de la figure 3.18d, mais la lenteur du processus ne permet pas d'accumuler un nombre suffisant d'évènements.

Pour mesurer $\Gamma_{2 \rightarrow 1}^1$ et $\Gamma_{1 \rightarrow 2}^2$, nous avons donc procédé comme illustré dans la figure 3.20b. Partant de la paroi dans le site 1 et la pointe sur le site 2, le signal iso-champ est mesuré continument jusqu'à ce qu'un changement de site $1 \rightarrow 2$ soit observé, fournissant une valeur du délai $t_{1 \rightarrow 2}^2$. La pointe est ensuite déplacée vers le site 1, et le signal iso-champ est mesuré continument jusqu'à ce qu'un changement de site $2 \rightarrow 1$ soit observé, fournissant une valeur du délai $t_{2 \rightarrow 1}^1$. En répétant cette procédure de nombreuses fois (≥ 10 pour chaque valeur de \mathcal{P}_L), on peut construire simultanément les distributions des délais $t_{1 \rightarrow 2}^2$ et $t_{2 \rightarrow 1}^1$. À partir des histogrammes (figure 3.19c), on peut ensuite construire la fonction de distribution cumulative $P(t_{i \rightarrow j}^k)$ (figure 3.19d). Celle-ci peut être ajustée par une fonction exponentielle avec un taux caractéristique $\Gamma_{i \rightarrow j}^k$, soit

$$P(t_{i \rightarrow j}^k) = 1 - \exp(-\Gamma_{i \rightarrow j}^k t_{i \rightarrow j}^k) . \quad (3.27)$$

1. La procédure de mesure sera détaillée plus bas.

Le résultat des mesures de $\Gamma_{2 \rightarrow 1}^1$ et $\Gamma_{1 \rightarrow 2}^2$ est montré dans les figures 3.20a et 3.20b, respectivement. On voit que ces taux de transition augmentent de manière exponentielle avec \mathcal{P}_L , avec des taux dépassant 0.1 Hz à la puissance maximum, soit un temps caractéristique < 10 secondes. Ce comportement montre que le laser tend à accélérer la dynamique de saut de la paroi vers le site illuminé par le laser.

Dans le même temps, nous avons observé que les taux de transition vers le site non illuminé par le laser ($\Gamma_{2 \rightarrow 1}^2$ et $\Gamma_{1 \rightarrow 2}^1$) restent très faibles, voire diminuent lorsque \mathcal{P}_L augmente. Comme ces taux sont très faibles, il est difficile d'accumuler assez d'évènements pour les estimer de manière précise. À partir de traces télégraphiques comme celles montrées dans la figure 3.18d, il est néanmoins possible de tirer des ordres de grandeur. Lorsque la pointe est positionnée sur le site 1 et une fois la paroi dans le site 1, aucun évènement $1 \rightarrow 2$ n'est

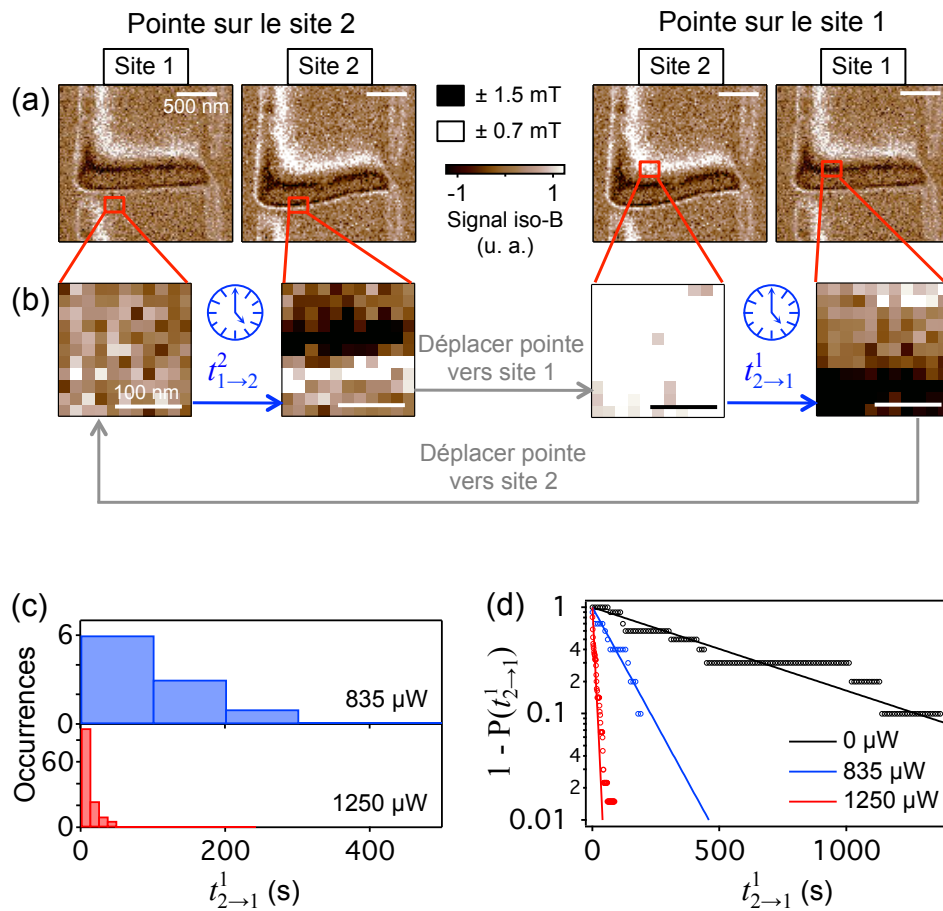


FIGURE 3.19 – (a) Images iso-champ de la paroi dans les sites 1 et 2. (b) Images iso-champ obtenues lorsque la fenêtre de balayage est réduite au carré rouge indiqué en (a). Les flèches décrivent la séquence suivie pour obtenir les histogrammes des délais $t_{1 \rightarrow 2}^2$ et $t_{2 \rightarrow 1}^1$. (c) Exemples d'histogrammes des délais $t_{2 \rightarrow 1}^1$ avant un saut de la paroi du site 2 vers le site 1, avec la pointe positionnée au-dessus du site 1, comme indiqué en (a) sur les deux images de droite. Sont montrés les cas $\mathcal{P}_L = 835$ et 1250μ W. (d) Exemples de fonctions de distribution cumulatives des délais $t_{2 \rightarrow 1}^1$ obtenues à partir des histogrammes. Sont montrés les cas $\mathcal{P}_L = 0, 835$ et 1250μ W. Les lignes continues sont l'ajustement par une simple décroissance exponentielle de taux caractéristique $\Gamma_{2 \rightarrow 1}^1$.

observé même après 3 heures de mesure continue, quelque soit la puissance \mathcal{P}_L utilisée. On en déduit une limite supérieure $\Gamma_{1 \rightarrow 2}^1 < 10^{-4}$ Hz. De même, lorsque la pointe est sur le site 2 et une fois la paroi dans le site 2, aucun évènement $2 \rightarrow 1$ n'est observé même après 3 heures de mesure continue, pour des puissances laser au-delà de ≈ 900 μ W. À plus basse puissance cependant, des sauts $2 \rightarrow 1$ sont observés sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de minutes, comme illustré par les traces de la figure 3.18d. À partir de ces évènements, on déduit que $\Gamma_{2 \rightarrow 1}^2$ se trouve dans la gamme $10^{-3} - 10^{-4}$ Hz pour $\mathcal{P}_L < 900$ μ W.

Enfin, pour le cas particulier $\mathcal{P}_L = 0$, c'est-à-dire en l'absence d'excitation laser, le taux $\Gamma_{2 \rightarrow 1}^2 = \Gamma_{2 \rightarrow 1}^1$ a été obtenu de la manière suivante. La paroi est d'abord préparée dans le site 2 en utilisant une forte puissance laser, le laser est éteint, puis l'état de la paroi est vérifié toutes les 2 minutes en allumant le laser pendant 5 secondes avec une puissance aussi faible que possible ($\mathcal{P}_L = 250$ μ W), jusqu'à ce que la paroi saute vers le site 1. En répétant cette séquence 10 fois, nous avons estimé un taux caractéristique $\Gamma_{2 \rightarrow 1}(\mathcal{P}_L = 0) = 1.8(1) \cdot 10^{-3}$ Hz, soit un temps caractéristique d'environ 10 minutes. Cela signifie que le site 2 est en fait métastable, tandis que le site 1, qui lui ne relaxe jamais en l'absence du laser sur les échelles de temps des expériences, est stable. Cela signifie aussi que les sauts observés dans la figure 3.17 n'ont lieu que parce que le laser a une puissance finie, non nulle. De ce point de vue, l'imagerie par microscopie à centre NV est, dans ce cas particulier au moins, légèrement perturbative.

Les résultats des mesures des quatre taux $\Gamma_{i \rightarrow j}^k$ sont résumés dans les figures 3.20a et 3.20b. Ils confirment que le laser tend à attirer la paroi dans le site de piégeage qui est illuminé par le laser, comme décrit par le modèle phénoménologique de la figure 3.18e.

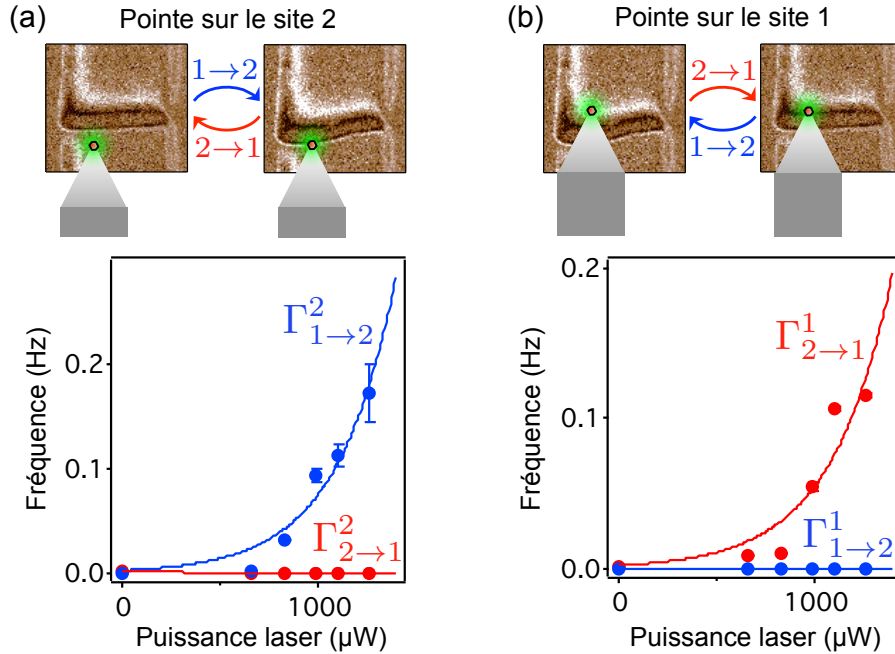


FIGURE 3.20 – Taux de transition $\Gamma_{i \rightarrow j}^k$ en fonction de \mathcal{P}_L pour les cas où la pointe est située au-dessus du site $k = 2$ (a) et du site $k = 1$ (b). Les points sont les mesures expérimentales, les lignes continues correspondent au modèle théorique décrit dans la section 3.4.3. Les schémas au-dessus des graphes indiquent la position de la pointe lors des mesures.

Nous allons maintenant proposer une interprétation de ce phénomène, puis nous montrons que le contrôle de cette dynamique de paroi peut être utilisé comme une ressource pour cartographier les sites de piégeage dans la piste magnétique.

3.4.3 Modèle de la dynamique de paroi sous l'effet du laser

Dans la figure 3.18e, nous avons proposé un modèle phénoménologique simple qui explique qualitativement les observations expérimentales. Les deux sites de piégeage agissent comme des puits de potentiel pour la paroi, séparés par une barrière. À la température $T > 0$, il existe une probabilité non nulle pour que la paroi “saute” d'un puits à l'autre, qui est proportionnelle au facteur d'Arrhenius, soit

$$\Gamma \propto \exp(-\Delta E/k_B T) , \quad (3.28)$$

où ΔE est la hauteur de la barrière à franchir et $k_B T$ est l'énergie thermique, avec k_B la constante de Boltzmann. L'évolution des taux de transition en fonction de la puissance du laser (figures 3.20c et 3.20d) suggèrent que le laser tend à diminuer localement l'énergie de la paroi, ce qui a pour effet de creuser le puits illuminé et d'abaisser la barrière. Le résultat net est que le laser tend à attirer la paroi vers le site illuminé et à la stabiliser dans ce site.

La question qui se pose maintenant est de savoir s'il existe un mécanisme physique qui pourrait supporter, qualitativement et quantitativement, l'hypothèse d'une énergie de paroi abaissée localement par le laser. Nous allons montrer que le chauffage local de la couche magnétique induit par le laser apparaît comme un mécanisme plausible pour expliquer les observations expérimentales.

Élévation de température induite par le laser

L'un des effets attendus du laser sur la piste magnétique est un échauffement local, puisqu'une puissance de l'ordre du milliwatt est focalisée sur une surface de l'ordre du μm^2 . Pour quantifier cet échauffement, nous avons utilisé le centre NV comme thermomètre de taille nanométrique [180–182]. Il a en effet été observé récemment que le paramètre de clivage axial D , qui correspond à l'interaction spin-spin entre les deux électrons non appariés du centre NV (cf. § 1.3.1), varie avec la température [183]. Autour de $T = 300$ K, cette variation, qui est essentiellement une conséquence de la dilatation thermique du cristal de diamant [184], vaut

$$\frac{dD}{dT} \approx -75 \text{ kHz/K} . \quad (3.29)$$

Nous avons placé le centre NV au-dessus de la piste magnétique (figure 3.21a) et avons enregistré des spectres ESR en fonction de la puissance laser \mathcal{P}_L (figure 3.21b). Les spectres ESR sont ajustés par une somme de deux fonctions gaussiennes, ce qui fournit les fréquences de résonance f_+ et f_- . Le paramètre D est simplement la moyenne de ces deux fréquences, $D = (f_+ + f_-)/2$. La figure 3.21c montre que D diminue de manière approximativement linéaire lorsque \mathcal{P}_L augmente. En convertissant la variation de D en variation de température ΔT à l'aide de l'équation (3.29), on trouve que ΔT augmente avec \mathcal{P}_L selon une pente

$$\frac{\Delta T}{\mathcal{P}_L} \approx 22 \text{ K/mW} . \quad (3.30)$$

Il y a donc une élévation significative de la température au niveau du centre NV, c'est-à-dire à environ 100 nm au-dessus de la surface de l'échantillon. Bien que nous n'ayons

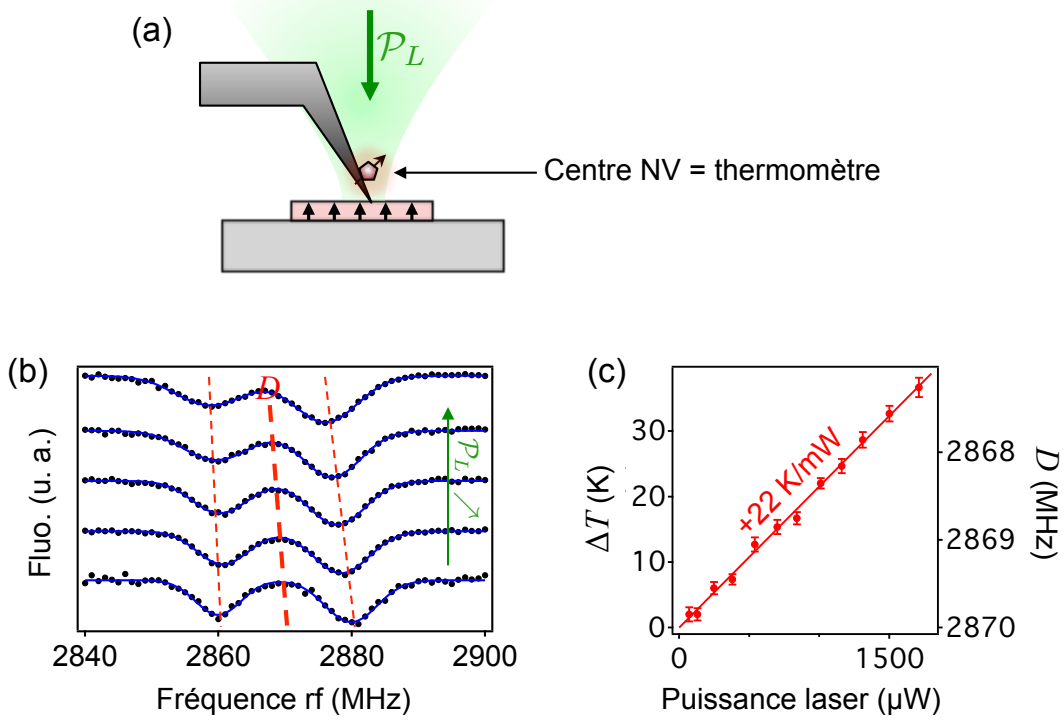


FIGURE 3.21 – (a) La température est mesurée en fonction de la puissance du laser \mathcal{P}_L , en plaçant la pointe au-dessus de la piste magnétique et en enregistrant des spectres ESR du centre NV. (b) Exemples de spectres ESR enregistrés à différentes puissances laser, montrant la diminution du paramètre de clivage axial D lorsque \mathcal{P}_L augmente. (c) Évolution de D avec la puissance du laser. La variation de température correspondante ΔT est déduite en utilisant le facteur de conversion de -75 kHz/K mesuré par Acosta et collègues autour de 300 K [183]. La ligne continue est un ajustement linéaire, indiquant une pente de $21.6(4) \text{ K/mW}$.

pas accès directement à la température à l'intérieur de la piste, on peut supposer que l'échauffement y est également significatif et du même ordre de grandeur qu'au niveau du centre NV. Nous allons maintenant voir comment cet échauffement local se traduit au niveau de la dynamique de la paroi.

Paysage de potentiel

Nous décrivons ici les grandes lignes du modèle développé par Joo-Von Kim, de l'Institut d'Electronique Fondamentale à Orsay. Les détails du calcul peuvent être trouvés dans la référence [40]. Dans un modèle à une dimension, la paroi, caractérisée par une position moyenne q le long de la piste, voit un paysage de potentiel de la forme

$$V(q) = -V_1[T(q_1)] \operatorname{sech}^2\left(\frac{q - q_1}{\Delta_p}\right) - V_2[T(q_2)] \operatorname{sech}^2\left(\frac{q - q_2}{\Delta_p}\right) + S(q)\sigma_{\text{tot}}[T(q)] , \quad (3.31)$$

où $T(q)$ est le profil spatial de température. Les deux premiers termes sont les puits de potentiel correspondant aux deux sites de piégeage 1 et 2, avec Δ_p la largeur de la paroi comme définie dans la section 3.2.1. Les centres des puits q_1 et q_2 sont tels que $q_2 - q_1 \approx 140 \text{ nm}$ d'après la figure 3.18c, et les forces de piégeage V_1 et V_2 dépendent de la température

locale. Le troisième terme dans l'équation (3.31) est l'énergie "intrinsèque" de la paroi, indépendamment du piégeage. Elle s'exprime comme le produit de l'énergie par unité de surface σ_{tot} , qui dépend de la température locale, par la surface de la paroi $S(q)$ (cf. § 3.2.1). Cette dernière dépend de la position puisque la paroi se déforme en passant du site 1 au site 2 (figure 3.18c), augmentant sa surface de $S(q_1) \approx 1506 \text{ nm}^2$ à $S(q_2) \approx 1520 \text{ nm}^2$. C'est d'ailleurs principalement pour cette raison que le site 1 est plus stable que le site 2.

Les dépendances en température de $V_i(T)$ et $\sigma_{\text{tot}}(T)$ peuvent être reliées aux variations de l'aimantation à saturation $M_s(T)$ selon

$$V_i(T) = V_{i,0} \left[\frac{M_s(T)}{M_s(0)} \right] \quad (3.32)$$

$$\sigma_{\text{tot}}(T) = \sigma_{\text{tot},0} \left[\frac{M_s(T)}{M_s(0)} \right]^2, \quad (3.33)$$

où $V_{i,0} = (3\sqrt{3}/2)\mu_0 M_s(0) H_{p,i} S \Delta_p$ avec $H_{p,i}$ le champ de dépiégeage associé au puits i . $H_{p,i}$ correspond au champ magnétique à appliquer selon z pour que la barrière disparaisse. La densité surfacique d'énergie $\sigma_{\text{tot},0}$ est celle d'une paroi de Bloch, donnée par $\sigma_{\text{tot},0} = 4\sqrt{AK_{\text{eff}}}$, où A est la constante d'échange et K_{eff} la constante d'anisotropie effective (cf. § 3.2.1). La relation (3.32) vient du fait que le champ de dépiégeage est indépendant de la température, tandis que la relation (3.33) vient de l'observation empirique que $\sigma_{\text{tot}}(T)$ varie comme $[M_s(T)]^2$ [40, 172].

Il suffit donc de connaître la fonction $M_s(T)$ pour déterminer la dépendance en température du paysage de potentiel (3.31). Or celle-ci peut être mesurée directement par magnétométrie à SQUID, comme le montre la figure 3.22. L'extrapolation des données permet d'estimer avec une bonne précision l'effet d'un échauffement jusqu'à 50 K au-dessus de la température ambiante. C'est cette extrapolation qui sera utilisée dans la suite.

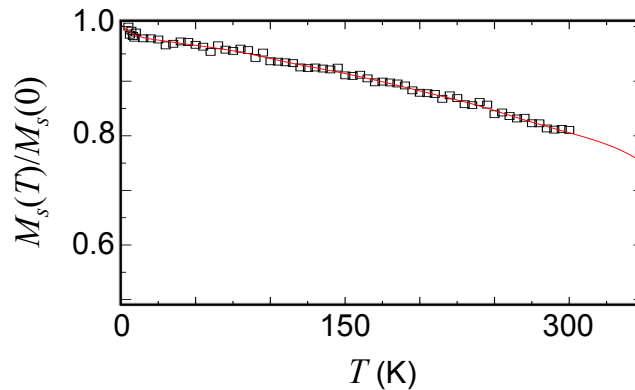


FIGURE 3.22 – Aimantation à saturation en fonction de la température. Les symboles carrés sont les mesures SQUID entre 4 K et 300 K, tandis que la ligne continue est un ajustement par une fonction spline avec une extrapolation jusqu'à 350 K.

Influence de l'échauffement local

L'effet du laser est de modifier le profil de température $T(q)$. Nous supposons que l'échauffement induit par le laser suit le profil gaussien du spot laser, soit

$$T(q) = T_0 \left(1 + a(\mathcal{P}_L) \exp \left[-\frac{2(q - q_L)^2}{w_L^2} \right] \right), \quad (3.34)$$

où a est une constante phénoménologique qui convertit la puissance laser \mathcal{P}_L en une variation de température, $T_0 = 300$ K, q_L est la position du centre du spot laser, et w_L est la taille caractéristique du spot sur l'échantillon, mesurée expérimentalement comme étant $w_L \approx 330$ nm.

La fonction de potentiel (3.31), qui tient compte de la dépendance en température $M_s(T)$, est tracée dans les figures 3.23a et 3.23b pour différents niveaux de chauffage induit par le laser. Quand le laser est focalisé du côté du site 1 (figure 3.23a), le minimum du potentiel au site 1 diminue progressivement en fonction de la puissance du laser et la hauteur de la barrière protégeant le site 2 diminue, conséquences de la diminution de l'énergie de la paroi induite par l'augmentation locale de température. Un phénomène similaire se produit lorsque le laser est focalisé du côté du site 2 (figure 3.23b). Ce résultat donne une base quantitative à l'interprétation qualitative de l'effet du laser donnée initialement (cf. figure 3.18e). Notons que dans le régime considéré ici, le paysage de potentiel reste dominé par les sites de piégeage. Le laser agit essentiellement comme une perturbation qui affecte la profondeur des puits de piégeage et la hauteur des barrières.

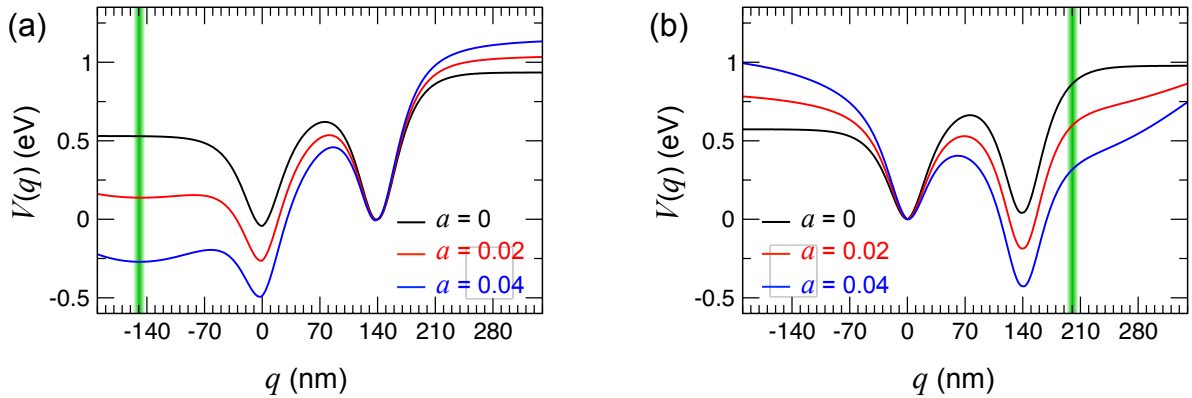


FIGURE 3.23 – Paysage énergétique de la paroi $V(q)$ en présence d'un chauffage induit par laser. Les deux puits ont des champs de dépiégeage $\mu_0 H_{p,1} = 1.1$ mT et $\mu_0 H_{p,2} = 1.8$ mT, choisis pour ajuster au mieux les taux de transition mesurés à $\mathcal{P}_L = 0$. Le paysage est montré pour le cas où le laser est focalisé en $q_L = -150$ nm (a) et $q_L = 200$ nm (b), comme indiqué par les lignes vertes, afin de mimer au mieux l'expérience. Un décalage vertical est appliqué aux différentes courbes pour faciliter leur comparaison. Le coefficient de chauffage est varié entre $a = 0$ (pas de chauffage) et $a = 0.04$ (augmentation de 12 K au centre du faisceau laser).

Taux de transition

Les taux de transition entre les deux puits de potentiel peuvent être calculés à partir de la fonction de potentiel (3.31). Pour cela, la méthode de Kramer est appliquée au

modèle stochastique unidimensionnel de la dynamique de la paroi. Les détails du calcul et les formules finales pour les taux de transition sont données dans la référence [40]. Elles font notamment apparaître le facteur d'Arrhenius $\exp(-\Delta E/k_B T)$, où ΔE est la hauteur apparente de la barrière. Les paramètres magnétiques du matériau utilisés dans le calcul sont pris de la référence [171]. Les paramètres libres restants sont les champs de dépiégeage $\mu_0 H_{p,1}$ et $\mu_0 H_{p,2}$ ainsi que le coefficient de chauffage $\frac{a}{\mathcal{P}_L}$. Les deux premiers sont choisis de manière à reproduire les taux de transition mesurés expérimentalement pour $\mathcal{P}_L = 0$, ce qui donne $\mu_0 H_{p,1} = 1.1$ mT et $\mu_0 H_{p,2} = 1.8$ mT, en bon accord avec les valeurs observées typiquement dans ce type d'échantillon [130]. Ces champs représentent les forces intrinsèques de piégeage au niveau de chaque site, et servent à calibrer le calcul des taux de transition.

Dans un second temps, le coefficient $\frac{a}{\mathcal{P}_L}$ est ajusté pour reproduire au mieux les données des figures 3.20c et 3.20d. On trouve $\frac{a}{\mathcal{P}_L} \approx 20 \text{ W}^{-1}$, ce qui correspond à une augmentation de température de 6 K/mW dans la piste magnétique au niveau du centre du faisceau laser. Ceci est en accord raisonnable avec l'augmentation de 20 K/mW mesurée au niveau du centre NV, et confirme que le chauffage par laser est un mécanisme très plausible pour expliquer le piégeage de la paroi par le laser.

3.4.4 Application à la cartographie des sites de piégeage

Nous avons vu que le laser utilisé dans la microscopie à centre NV peut affecter localement les propriétés magnétiques de l'échantillon et, à puissance suffisante, peut attirer et stabiliser une paroi dans un site de piégeage voisin du site d'origine. Nous allons maintenant voir comment il est possible d'exploiter ce nouveau degré de contrôle pour explorer le piégeage dans la piste magnétique.

En effet, en déplaçant la pointe – et donc le laser – le long de la piste avec une puissance laser suffisamment élevée, typiquement $\mathcal{P}_L > 1$ mW, la paroi est forcée en permanence à sauter vers le site de piégeage le plus proche de la pointe, sautant ainsi de site en site en suivant la direction de balayage. Ceci est illustré dans la figure 3.24a, qui montre quelques étapes intermédiaires au cours de l'acquisition d'une image iso-champ de la piste. On observe, en temps réel², la paroi qui saute de site en site à mesure que la pointe est déplacée du haut vers le bas de la piste. Cela permet de visualiser directement les sites de piégeage disponibles dans la portion de piste imagée³. Pour étudier un site particulier, il est possible de “tirer” la paroi jusqu'à ce site en utilisant une forte puissance laser, puis d'éteindre le laser dès que la paroi est piégée dans le site en question. À la suite de cette préparation assistée par laser, on peut alors imager la paroi sans la perturber ni la déplacer en utilisant une puissance laser suffisamment faible, typiquement $\mathcal{P}_L = 250 \mu\text{W}$.

Nous avons utilisé cette technique de préparation-imagerie pour cartographier les sites de piégeage présents dans une portion de piste de 2 μm de long. Nous avons ainsi identifié clairement 6 sites de piégeage, montrés dans la figure 3.24b. Hormis le site 2 qui est métastable, puisqu'il relaxe vers le site 1 avec un temps caractéristique de 10 minutes, les 5 autres sites sont stables à température ambiante, c'est-à-dire qu'aucun saut vers un site voisin n'est observé, en l'absence du laser, pendant une durée de plusieurs heures. À

2. L'expression “temps réel” est employée ici pour signifier que les sauts de la paroi sont visibles au cours de l'acquisition et non pas par traitement ultérieur. La dynamique d'un saut individuel, de temps caractéristique sub-nanoseconde, n'est bien sûr pas résolue dans nos expériences.

3. L'image qui figure en couverture de ce manuscrit est une vue d'artiste de ce phénomène, réalisée par Joo-Von Kim.

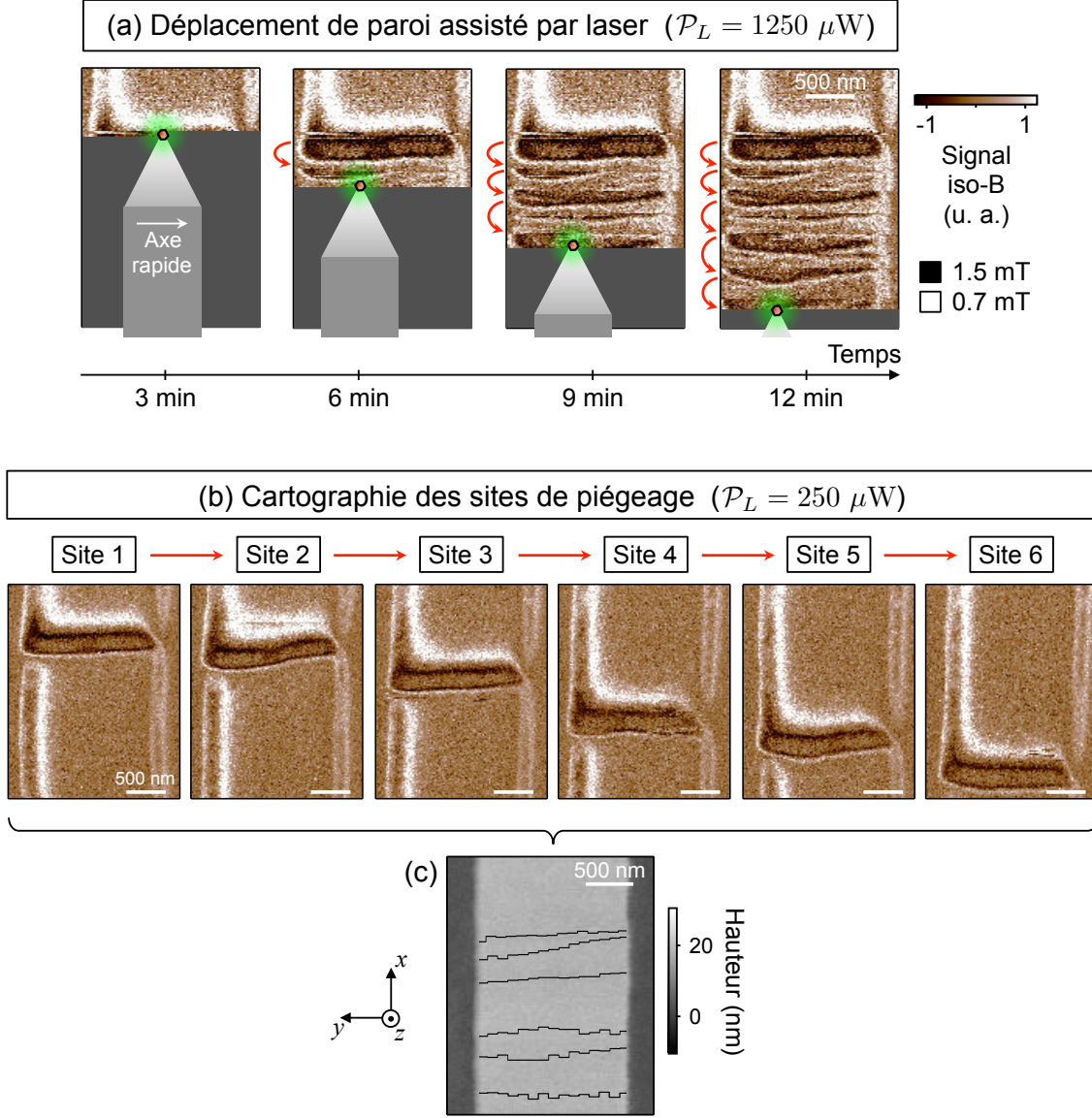


FIGURE 3.24 – (a) Illustration du contrôle de la position de la paroi par le laser. Les images sont des instantanés obtenus au cours de l’acquisition d’une image iso-champ de la piste à forte puissance laser ($\mathcal{P}_L = 1250 \mu\text{W}$). À mesure que la pointe se déplace le long de la piste de haut en bas, la paroi saute de site en site, attirée par le laser focalisé sur la pointe. (b) Images iso-champ obtenues à basse puissance ($\mathcal{P}_L = 250 \mu\text{W}$) après avoir préparé la paroi dans chacun des 6 sites de piégeage stables ou métastables identifiés dans cette portion de piste. (c) Carte des profils de position des 6 sites de piégeage (lignes noires), superposés à l’image AFM.

l’inverse, des sites intermédiaires peuvent être aperçus lors du balayage à haute puissance (figure 3.24a), mais ceux-ci ne sont pas assez profonds pour stabiliser la paroi à température ambiante, qui relaxe donc rapidement, en quelques secondes au plus, vers un site voisin stable.

À partir des images des 6 sites stables (figure 3.24b), on peut finalement reconstruire les profils de position $x_p(y)$ de ces sites, comme montré dans la figure 3.24c en superposition de l’image AFM. Les parois sont à chaque fois légèrement déformées, mais restent proches

de la forme idéale parallèle à y . De plus, la densité de sites de piégeage est relativement faible : il y a en moyenne un site stable tous les 300 nm, ce qui est bien plus faible que dans d'autres systèmes de matériaux à anisotropie perpendiculaire tels que Co/Pt, Co/Pd ou Co/Ni [130]. Ce degré de désordre indique une très faible densité de défauts structuraux et exclue la rugosité des bords de la piste magnétique comme source principale de piégeage. En revanche, le détail microscopique de ces défauts structuraux – texture cristalline, joints de grain, rugosité d'interface, etc. – et leur contribution au piégeage reste à clarifier [185].

Cette technique de cartographie des sites de piégeage pourrait permettre d'optimiser les propriétés des couches magnétiques, notamment dans le contexte du développement de la "racetrack memory". En effet, le but ici est de créer des sites de piégeage régulièrement espacés les uns des autres, avec un espacement le plus petit possible. En termes de résolution spatiale, la microscope à centre NV permet ainsi de gagner un ordre de grandeur par rapport à la technique d'imagerie standard pour les films ultraminces, la microscopie magnéto-optique à effet Kerr.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons employé le microscope à centre NV pour imager et étudier des parois de domaine dans des couches ultraminces à aimantation perpendiculaire. Nous avons en particulier développé une méthode qui permet de déterminer la nature d'une paroi au repos, ce qui constitue une avancée importante pour mieux comprendre et optimiser les processus de déplacement des parois par un courant électrique, avec des implications à la fois sur le plan fondamental et technologique. Nous avons également montré que le microscope à centre NV permet de déclencher et d'observer in situ les sauts d'une paroi entre différents sites de piégeage adjacents. Cette technique permet de cartographier les sites de piégeage dans une piste magnétique, ce qui est également un enjeu important pour les applications.

Ces résultats montrent que le microscope à centre NV est un instrument tout à fait pertinent pour l'étude des couches ferromagnétiques ultraminces, qui permet d'ores et déjà d'aller bien au-delà de ce qu'il est possible de faire avec les autres techniques existantes. Le microscope à centre NV se présente donc comme un outil de choix pour les futurs axes de recherche du domaine, en particulier pour la détection et l'étude des skyrmions dans les couches ultraminces [158].

En outre, on peut anticiper que les méthodes d'analyse des mesures de champ introduites dans ce chapitre, qui nous ont permis de déterminer la nature d'une paroi, peuvent être adaptées à d'autres types d'objets magnétiques pour lesquels il existe une inconnue quant à la distribution de l'aimantation. Un exemple notable concerne les couches minces multiferroïques telles que BiFeO₃. La question de savoir comment le couplage magnéto-électrique affecte le profil de l'aimantation dans les parois des domaines ferroélectriques est actuellement ouverte [120], et pourrait en principe être adressée par microscopie à centre NV.

Détection du bruit magnétique avec le centre NV du diamant par relaxométrie de spin

Sommaire

4.1	Introduction	127
4.2	Relaxation de spin du centre NV dans les nanodiamants	128
4.2.1	Mesure optique du temps de relaxation de spin T_1	128
4.2.2	Étude de T_1 en fonction de la taille du nanodiamant	132
4.2.3	Relaxation induite par un bain de spins surfacique	133
4.3	Détection de molécules paramagnétiques par relaxométrie de spin	139
4.3.1	Réduction du temps de relaxation T_1	139
4.3.2	Réduction du contraste optique	142
4.3.3	Sensibilité de la méthode	144
4.4	Conclusion	146

4.1 Introduction

Dans les chapitres précédents, nous nous sommes essentiellement concentrés sur l'utilisation du centre NV du diamant pour la mesure de champs magnétiques statiques. En intégrant un centre NV dans un microscope à sonde locale, nous avons en particulier cartographié le champ de fuite statique produit par des échantillons ferromagnétiques. Cependant, une vaste classe de matériaux et d'échantillons ne produit pas de champ statique mais plutôt un champ fluctuant aléatoirement, qui s'annule en moyenne. Il s'agit des échantillons paramagnétiques, incluant un grand nombre de molécules et espèces biologiques.

Dans ce chapitre, nous allons voir que le centre NV peut également être utilisé pour détecter les fluctuations du champ magnétique, ou "bruit magnétique". Nous nous focaliserons sur une méthode en particulier, basée sur la mesure du temps de relaxation longitudinale du spin du centre NV, noté T_1 [41]. Cette méthode, qui utilise des moyens purement optiques, est sensible au bruit magnétique à la fréquence de transition de spin du centre NV, soit à ~ 3 GHz. Nous commencerons par décrire la méthode pour mesurer le temps T_1 , puis étudierons les variations de T_1 pour les centres NV dans les nanodiamants (§ 4.2). La corrélation avec la taille du nanodiamant suggère que la relaxation est principalement causée par des moments magnétiques fluctuants localisés sur la surface du

nanodiamant. Nous montrerons ensuite que l'ajout de molécules paramagnétiques sur la surface des nanodiamants mène à une réduction de T_1 , démontrant ainsi que la relaxométrie de spin renseigne sur le bruit magnétique local (§ 4.3). Les possibilités offertes par cette méthode de relaxométrie, ainsi que par d'autres techniques similaires développées récemment, seront également discutées.

4.2 Relaxation de spin du centre NV dans les nanodiamants

Le temps de relaxation longitudinale d'un spin, noté T_1 , est le temps caractéristique qui décrit la relaxation d'un état polarisé vers l'équilibre thermodynamique. Dans le cas du centre NV à température ambiante, l'énergie thermique $k_B T$ est telle que $k_B T \gg hD$, où D est le paramètre de clivage axial qui sépare l'état $|m_s = 0\rangle$ du doublet $|m_s = \pm 1\rangle$ (cf. § 1.3.1). À l'équilibre, le spin électronique du centre NV est donc dans un mélange statistique équilibré des trois états de spin $|m_s = 0, \pm 1\rangle$. Après une impulsion laser, le spin est efficacement polarisé dans l'état $|m_s = 0\rangle$ (cf. § 1.2.2). Le temps T_1 décrit donc le retour à l'équilibre à partir de cet état polarisé.

Dans cette section, nous décrivons d'abord la procédure permettant de mesurer le temps T_1 en utilisant les propriétés optiques du centre NV (§ 4.2.1). Nous chercherons ensuite à déterminer le mécanisme qui gouverne la relaxation de spin des centres NV dans les nanodiamants. Pour cela, nous étudierons l'évolution de T_1 en fonction de la taille du nanodiamant (§ 4.2.2), puis proposerons un modèle pour expliquer les observations expérimentales (§ 4.2.3).

4.2.1 Mesure optique du temps de relaxation de spin T_1

Le temps de relaxation longitudinale du spin électronique du centre NV peut être mesuré de manière purement optique, en observant la fluorescence du centre NV en réponse à une séquence d'impulsions laser microsecondes. Expérimentalement, le seul élément qu'il faut ajouter au microscope confocal utilisé dans les chapitres précédents (cf. § 1.4.2) est un modulateur acousto-optique (AA Opto-Electronic MT200-A0,5-VIS). Ce modulateur, qui a un temps de montée/descente de l'ordre de 10 ns, permet de générer des séquences d'impulsions arbitraires à partir d'un laser continu (figure 4.1a). L'appareillage électronique associé comprend un générateur d'impulsions programmable (SpinCore PulseBlasterESR-PRO, résolution 2.5 ns) et un module de comptage résolu en temps (FastComTec P7887, résolution 250 ps).

Le principe de la mesure repose sur la séquence schématisée dans la figure 4.1b. Après initialisation dans l'état de spin $|m_s = 0\rangle$ avec une impulsion laser de durée 3 μ s, le centre NV est laissé dans le noir pendant une durée τ . L'état du spin électronique est alors lu en mesurant la fluorescence émise lors d'une seconde impulsion laser de même durée, bénéficiant du fait que l'état $|m_s = 0\rangle$ est un état brillant alors que les états $|m_s = \pm 1\rangle$ sont des états sombres (cf. § 1.2.2). Pendant le temps d'attente τ , le spin a une certaine probabilité d'effectuer un saut de l'état $|m_s = 0\rangle$ vers l'un des états $|m_s = \pm 1\rangle$. La séquence est répétée un grand nombre de fois de manière à obtenir la probabilité moyenne d'occupation de l'état $|m_s = 0\rangle$. En variant le temps d'attente τ , il est donc possible d'observer directement la relaxation vers un mélange statistique des états $|m_s = 0, \pm 1\rangle$, avec un temps caractéristique T_1 .

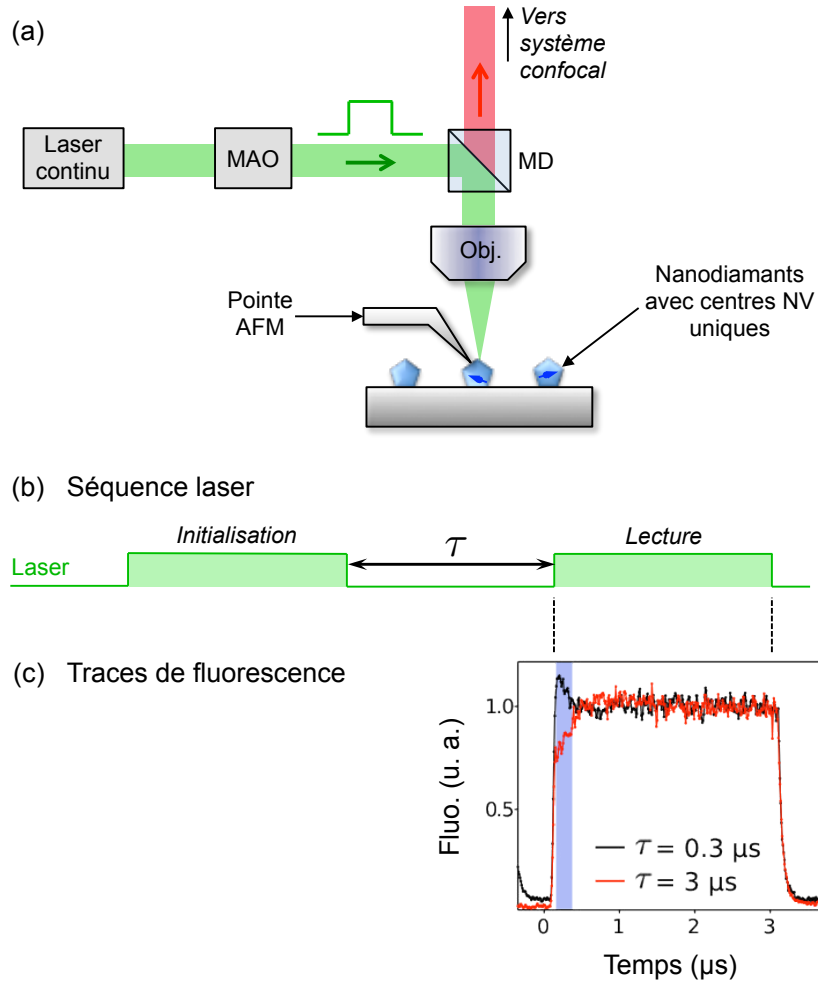


FIGURE 4.1 – (a) Schéma de l'expérience. Un modulateur acousto-optique (MAO) permet de générer des séquences arbitraires d'impulsions laser de quelques microsecondes pour exciter le centre NV. La fluorescence est mesurée en fonction du temps avec une photodiode à avalanche et un module de comptage synchronisé à la séquence d'impulsions. MD : miroir dichroïque. (b) Séquence utilisée pour sonder la dynamique de relaxation de spin du centre NV. Une première impulsion laser initialise l'état de spin puis, après un temps d'attente τ , une deuxième impulsion lit l'état de spin. (c) Traces temporelles de fluorescence obtenues lors de l'impulsion de lecture après deux temps d'attente différents. Le signal est accumulé sur un grand nombre de répétitions de la même séquence (typiquement 10^7 répétitions). La région bleutée représente la fenêtre d'intégration utilisée pour tracer la courbe de relaxation $I(\tau)$.

Des traces de fluorescence typiques enregistrées lors de l'impulsion de lecture, pour un centre NV dans un nanodiamant, sont montrées dans la figure 4.1c. Ces traces font apparaître un régime transitoire d'une durée d'environ 500 ns, dont la forme dépend du temps d'attente τ précédant l'impulsion, suivi d'un régime stationnaire indépendant de τ . Dans ce régime stationnaire, le centre NV est efficacement polarisé en spin dans l'état $|m_s = 0\rangle$ des niveaux fondamental et excité, mais une partie significative des populations se trouve également dans l'état métastable (cf. § 1.4.2).

Le régime transitoire dépend des populations initiales du centre NV. Dans l'exemple de

la figure 4.1c, après un délai $\tau = 3 \mu\text{s}$ le centre NV a quasiment complètement relaxé vers l'équilibre, c'est-à-dire vers un mélange équilibré des états $|m_s = 0, \pm 1\rangle$. Cela résulte en un faible taux de fluorescence, qui augmente ensuite vers le taux stationnaire en raison de la polarisation progressive de l'état de spin. À l'inverse, après un délai $\tau = 0.3 \mu\text{s}$ le centre NV est encore fortement polarisé dans l'état $|m_s = 0\rangle$ du niveau fondamental, résultant en un fort taux de fluorescence. Ce pic de fluorescence est suivi d'une décroissance liée à l'établissement progressif d'une population dans le niveau métastable.

Pour estimer le degré de polarisation du spin, le signal de fluorescence est intégré au début de l'impulsion, dans une fenêtre de durée typique $T_{\text{int}} = 300 \text{ ns}$ (zone bleutée dans la figure 4.1c). En traçant le signal intégré en fonction du délai τ , on obtient alors une courbe de relaxation notée $I(\tau)$. La figure 4.2a montre un résultat typique de courbe de relaxation $I(\tau)$ enregistrée pour un centre NV dans un nanodiamant. Deux dynamiques distinctes sont observées. Aux temps courts, $I(\tau)$ augmente en raison de la relaxation de la population du niveau métastable vers le niveau fondamental, avec un temps caractéristique $T_m \approx 200 \text{ ns}$. Aux temps longs ($\tau \gg T_m$), le signal décroît en raison de la relaxation de spin au sein de ce niveau fondamental, caractérisée par la constante de temps T_1 . Nous allons maintenant établir un modèle simplifié de la dynamique du centre NV permettant de comprendre de façon quantitative cette observation expérimentale.

Dynamique du centre NV dans le noir

D'après le modèle développé au chapitre 1 (cf. § 1.4.1), le taux de fluorescence au début de l'impulsion laser de lecture peut s'écrire comme

$$I(\tau) \approx A_0 n_0(\tau) + A_1 [n_{+1}(\tau) + n_{-1}(\tau)] , \quad (4.1)$$

où A_0 et A_1 sont les taux de fluorescence associés aux états de spin $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = \pm 1\rangle$ du niveau fondamental, respectivement, et $n_{0,\pm 1}(\tau)$ sont les populations de ces états juste avant l'impulsion. L'une des propriétés fondamentales du centre NV est que $A_1 < A_0$, ce qui permet la lecture optique de l'état de spin. Le problème qui se pose ici est de déterminer les populations $n_{0,\pm 1}$ en fonction du délai τ qui sépare l'impulsion laser de lecture de l'impulsion d'initialisation précédente.

Il existe trois temps caractéristiques qui décrivent la relaxation du centre NV à la suite de l'impulsion d'initialisation (figure 4.2b). Le premier est la durée de vie du niveau excité, qui vaut $\tau_{\text{eff}} \approx 12 \text{ ns}$ (cf. § 1.4.2). Une fois ce niveau excité complètement dépeuplé, il ne reste des populations que dans le niveau fondamental, notées $n_{0,\pm 1}$, ainsi que dans le niveau métastable, notée n_m (figure 4.2c). Le deuxième temps caractéristique est la durée de vie du niveau métastable, qui vaut $T_m \approx 200 \text{ ns}$ [61, 62] et qui correspond au temps de relaxation du niveau métastable vers le niveau fondamental. Enfin, le troisième temps caractéristique est le temps de relaxation de spin T_1 , qui correspond à la relaxation au sein du niveau fondamental.

De façon générale, $(T_1, T_m) \gg \tau_{\text{eff}}$, si bien qu'il suffit de considérer le système à quatre niveaux de la figure 4.2c, comprenant le niveau métastable et le triplet de spin fondamental. On définit k_{01} comme le taux de transition bidirectionnel entre les états $|m_s = 0\rangle$ et $|m_s = \pm 1\rangle$ du niveau fondamental, et k_{m0} (resp. k_{m1}) comme le taux de relaxation du niveau métastable vers l'état $|m_s = 0\rangle$ (resp. vers les états $|m_s = \pm 1\rangle$). De plus, on introduit α tel que

$$\begin{cases} k_{m0} &= \alpha k_m \\ k_{m1} &= \frac{1-\alpha}{2} k_m \end{cases} , \quad (4.2)$$

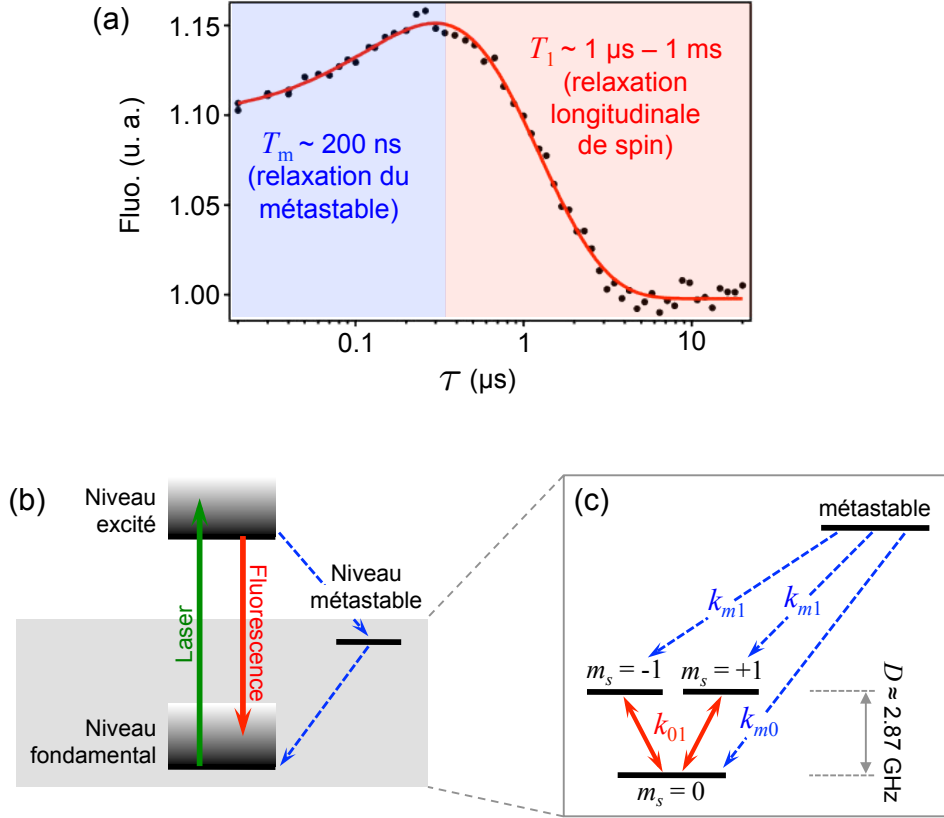


FIGURE 4.2 – (a) Courbe de relaxation $I(\tau)$ mesurée pour un centre NV situé dans un nanodiamant de taille ≈ 10 nm. La ligne continue est un ajustement des données avec l'équation (4.6), qui fournit les paramètres suivants : $T_1 = 1.1 \mu\text{s}$, $C_1 = 0.25$, $T_m = 210$ ns, $C_m = 0.15$. (b) Structure simplifiée des niveaux d'énergie du centre NV, montrant les transitions optiques ainsi que le chemin de relaxation non radiative via le niveau métastable. (c) Agrandissement de (b) montrant uniquement les quatre niveaux de plus basse énergie, qui sont ceux considérés pour décrire la dynamique du centre NV dans le noir et aboutir à l'équation (4.6).

avec $k_m^{-1} = T_m \approx 200$ ns et typiquement $\alpha \sim 0.5$ (cf. § 1.4.2).

Nous pouvons maintenant résoudre les équations de taux classiques

$$\frac{dn_i}{dt} = \sum_j (k_{ji}n_j - k_{ij}n_i), \quad (4.3)$$

en considérant un système à quatre niveaux fermé,

$$n_0 + n_{+1} + n_{-1} + n_m = 1. \quad (4.4)$$

On obtient ainsi l'expression des populations $\{n_i(\tau)\}$ en fonction des populations initiales $\{n_i(0)\}$, soit

$$\begin{cases} n_m(\tau) &= n_m(0)e^{-\tau/T_m} \\ n_0(\tau) &= \frac{1}{3} + \left[n_0(0) - \frac{1}{3} \right] e^{-\tau/T_1} + n_m(0) \left[\alpha T_1 - \frac{T_m}{3} \right] \frac{e^{-\tau/T_1} - e^{-\tau/T_m}}{T_1 - T_m} \\ n_{\pm 1}(\tau) &= \frac{1}{3} \pm \left[\frac{n_{+1}(0) - n_{-1}(0)}{2} \right] e^{-\tau/(3T_1)} - \frac{1}{2} \left[n_0(0) - \frac{1}{3} \right] e^{-\tau/T_1} \\ &\quad - \frac{n_m(0)}{2} \left[\frac{\alpha T_1 - \frac{T_m}{3}}{T_1 - T_m} e^{-\tau/T_1} + \frac{(1-\alpha)T_1 - \frac{2T_m}{3}}{T_1 - T_m} e^{-\tau/T_m} \right] \end{cases}, \quad (4.5)$$

où l'on a posé $T_1 = 1/3k_{01}$.

Défini ainsi, T_1 est le temps caractéristique de décroissance de la population n_0 associé à la relaxation de spin. En introduisant les expressions (4.5) dans l'équation (4.1), le signal de fluorescence $I(\tau)$ s'écrit sous la forme

$$I(\tau) = I(\infty) [1 - C_m e^{-\tau/T_m} + C_1 e^{-\tau/T_1}] , \quad (4.6)$$

avec

$$\begin{cases} I(\infty) &= \frac{A_0+2A_1}{3} \\ C_1 &\approx \frac{A_0-A_1}{A_0+2A_1} [3n_0(0) - 1 + n_m(0)] \\ C_m &\approx n_m(0) \end{cases} . \quad (4.7)$$

Nous avons choisi ici $\alpha = 1/3$ afin de simplifier les expressions des coefficients C_1 et C_m . Dans ce cas, C_1 est proportionnel à la différence des taux de fluorescence dépendant du spin ($A_0 - A_1$), et au degré de polarisation initiale dans l'état $|m_s = 0\rangle$.

L'expression (4.6) montre que la courbe $I(\tau)$ mesurée expérimentalement comporte deux dynamiques, correspondant d'une part à la relaxation du niveau métastable vers le fondamental, de temps caractéristique $T_m \approx 200$ ns, et d'autre part à la relaxation de spin au sein du fondamental, de temps caractéristique T_1 . Le contraste optique de la décroissance en T_1 est donné par le coefficient C_1 , qui vaut typiquement $C_1 \sim 0.2$. Il est essentiellement équivalent au contraste \mathcal{C} des résonances de spin observées en spectroscopie ESR (cf. § 1.2.2).

Nous pouvons maintenant ajuster les données expérimentales de $I(\tau)$ avec l'équation (4.6), en laissant libres les paramètres $I(\infty)$, T_1 , T_m , C_1 et C_m . Dans l'exemple de la figure 4.2a, qui correspond à un centre NV dans un nanodiamant, l'ajustement montre un très bon accord avec les données expérimentales et indique un temps de relaxation de spin de $T_1 = 1.1 \mu\text{s}$. Plus généralement, les valeurs de T_1 mesurées dans nos nanodiamants s'étendent sur trois ordres de grandeur, entre $1 \mu\text{s}$ et 1 ms. Or dans le diamant massif, le temps T_1 des centres NV a été mesuré dans la gamme $T_1 = 1 - 10$ ms à température ambiante [69]. Il semble donc qu'il existe une différence de plusieurs ordres de grandeur entre le temps T_1 d'un centre NV très proche de la surface, comme dans un nanodiamant, et celui d'un centre NV très loin de toute surface, comme dans un diamant massif. L'objet de la section suivante est d'étudier cette différence de manière quantitative.

4.2.2 Étude de T_1 en fonction de la taille du nanodiamant

Pour comprendre les faibles valeurs de T_1 observées dans les nanodiamants comparativement aux valeurs mesurées dans le diamant massif, nous avons cherché à étudier l'influence de la taille du nanodiamant. Les nanodiamants que nous avons étudiés sont les mêmes que ceux utilisés dans les chapitres précédents (cf. § 2.2.1). Ils ont été dispersés sur une lame de verre et étudiés avec le microscope confocal combiné à l'AFM (figure 4.1a), le tout aux conditions ambiantes.

Pour chaque nanodiamant fluorescent, la fonction d'autocorrélation de l'intensité de fluorescence $g^{(2)}(\tau)$ est mesurée de manière à vérifier que le nanodiamant contient un seul centre NV (cf. § 1.4.2). La courbe de relaxation $I(\tau)$ est alors enregistrée et ajustée par l'équation (4.6), fournissant les paramètres T_1 , T_m , C_1 et C_m . Chaque nanodiamant étudié a été également imagé par AFM afin de déduire son diamètre moyen d_0 , défini comme la hauteur maximum observée dans l'image AFM. La figure 4.3 montre, à titre d'exemple, les courbes $I(\tau)$ de deux centres NV situés dans des nanodiamants de tailles différentes. Pour

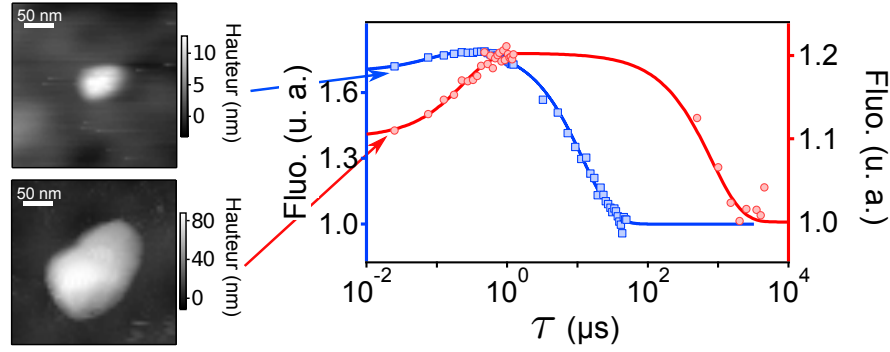


FIGURE 4.3 – Courbes de relaxation $I(\tau)$ mesurées pour un centre NV individuel dans un petit nanodiamant ($d_0 = 9 \pm 3$ nm, courbe bleue) et dans un nanodiamant plus gros ($d_0 = 73 \pm 10$ nm, courbe rouge). L'ajustement par l'équation (4.6) (lignes continues) donne des valeurs de T_1 de 11.8 ± 0.4 μ s et 802 ± 136 μ s, respectivement. Les images AFM correspondantes sont montrées à gauche du graphe.

un nanodiamant de taille $d_0 = 9 \pm 3$ nm, le centre NV unique a un temps de relaxation de spin $T_1 = 11.8 \pm 0.4$ μ s, tandis que pour un nanodiamant de taille $d_0 = 73 \pm 10$ nm, le temps de relaxation atteint $T_1 = 802 \pm 136$ μ s. Cette différence de deux ordres de grandeur suggère une corrélation possible entre le temps T_1 du spin du centre NV et la taille du nanodiamant dans lequel il se trouve.

Nous avons effectué une statistique sur un ensemble de 51 centres NV dans des nanodiamants isolés, avec des diamètres d_0 allant de 7 nm à 88 nm. Les nuages de points pour les paramètres T_1 , T_m , C_1 et C_m en fonction de la taille du nanodiamant sont montrés dans les figures 4.4a à 4.4d. Pour les paramètres T_m , C_1 et C_m , il n'y a apparemment pas de corrélation avec la taille. De plus, on trouve que $T_m = 198 \pm 72$ ns (moyenne \pm écart-type), en bon accord la valeur observée pour les centres NV dans le diamant massif [61, 62].

En revanche, le temps de relaxation de spin T_1 est clairement corrélé à la taille puisqu'il augmente sur trois ordres de grandeur lorsque la taille diminue dans la gamme considérée. Le temps T_1 passe ainsi de quelques μ s pour les plus petits nanodiamants (< 10 nm) à plus de 1 ms pour les plus gros (> 60 nm). Ce comportement suggère que le mécanisme limitant pour la relaxation de spin est lié à des effets de surface. Plus le nanodiamant est gros, plus la surface est loin du centre NV et plus la relaxation est lente.

L'objet de la section suivante est de proposer un modèle permettant d'expliquer ces observations expérimentales.

4.2.3 Relaxation induite par un bain de spins surfacique

Pour des centres NV situés dans des échantillons de diamant massif, il a été identifié que le couplage du centre NV aux phonons est la principale cause de relaxation de spin à température ambiante, avec des temps T_1 valant typiquement entre 1 ms et 10 ms [69]. À basse température, l'influence des phonons est réduite, ce qui mène à des temps T_1 pouvant atteindre 100 s à 4 K [69]. Le mécanisme dominant est alors la relaxation induite par les impuretés paramagnétiques présentes dans le diamant, principalement les atomes d'azote substitutionnels (cf. § 1.2.3).

Dans les nanodiamants, il existe un canal de relaxation supplémentaire lié à la proximité de la surface du diamant. En particulier, un bain de centres paramagnétiques recou-

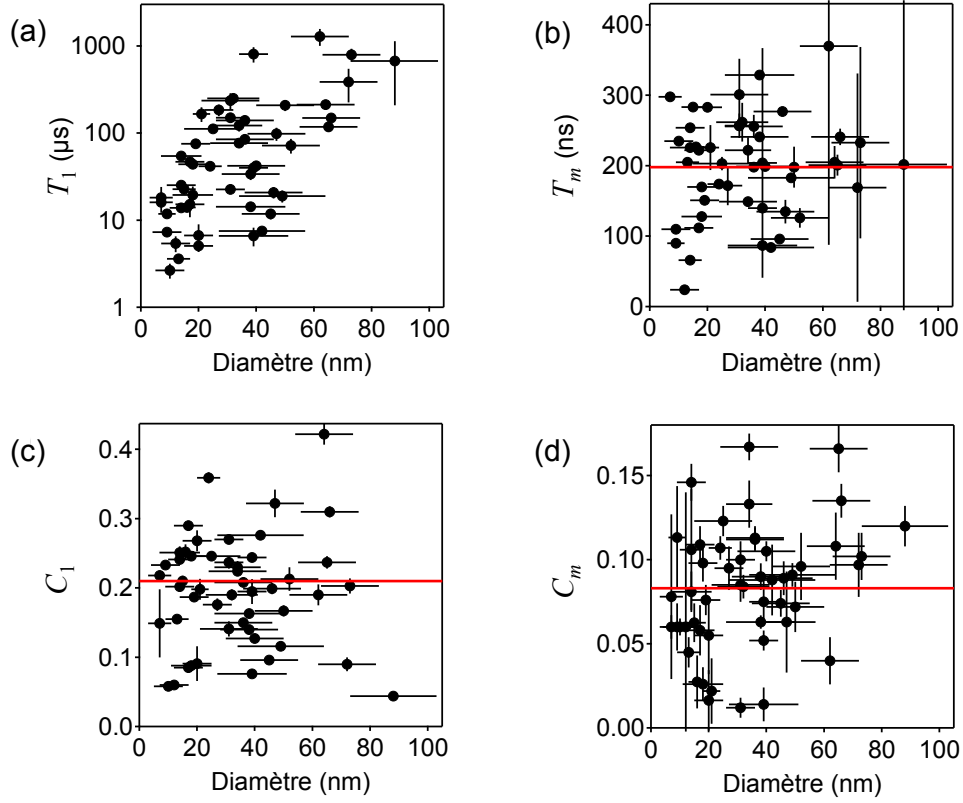


FIGURE 4.4 – Valeurs des paramètres T_1 (a), T_m (b), C_1 (c) et C_m (d) extraits de l’ajustement des données en fonction du diamètre du nanodiamant contenant le centre NV. Les barres d’erreur verticales (resp. horizontales) représentent l’incertitude issue de l’ajustement des courbes $I(\tau)$ (resp. de la mesure AFM). Dans (b-d), les lignes horizontales indiquent la valeur moyenne obtenue à partir des données expérimentales, soit $T_m = 198 \pm 72$ ns, $C_1 = 0.21 \pm 0.12$ et $C_m = 0.083 \pm 0.037$ (moyenne \pm écart-type).

vant la surface a été identifié par de nombreuses études [71, 186–191] et est principalement assigné à des liaisons pendantes comportant des spins électroniques non appariés. Par exemple, pour des nanodiamants avec une surface à terminaison oxygène comme ceux utilisés ici, Tisler et collègues ont déterminé une densité surfacique de spins $\sigma \approx 1 - 10$ spins/nm² [191].

Pour expliquer nos observations, nous proposons que la réduction du temps T_1 des centres NV individuels dans nos nanodiamants est due aux fluctuations de ces centres paramagnétiques de surface (CPS). Ces fluctuations ajoutent une contribution k_{01}^{cps} au taux de transition k_{01}^{bulk} du matériau massif, de sorte que le taux total s’écrit

$$k_{01} = k_{01}^{\text{bulk}} + k_{01}^{\text{cps}}. \quad (4.8)$$

Ici, $k_{01}^{\text{bulk}} = 1/3T_1^{\text{bulk}}$ où T_1^{bulk} est le temps de relaxation de spin d’un centre NV dans le diamant massif, le facteur 3 ayant été établi précédemment (cf. § 4.2.1). Nous allons maintenant tester l’hypothèse des CPS en modélisant le nanodiamant comme une sphère et les CPS comme un ensemble de spins dont la direction fluctue aléatoirement, de densité surfacique σ (figure 4.5a).

Dans une approche semi-classique, les CPS produisent au niveau du centre NV un champ magnétique fluctuant $\mathbf{B}(t)$ qui est responsable de la relaxation de son état de

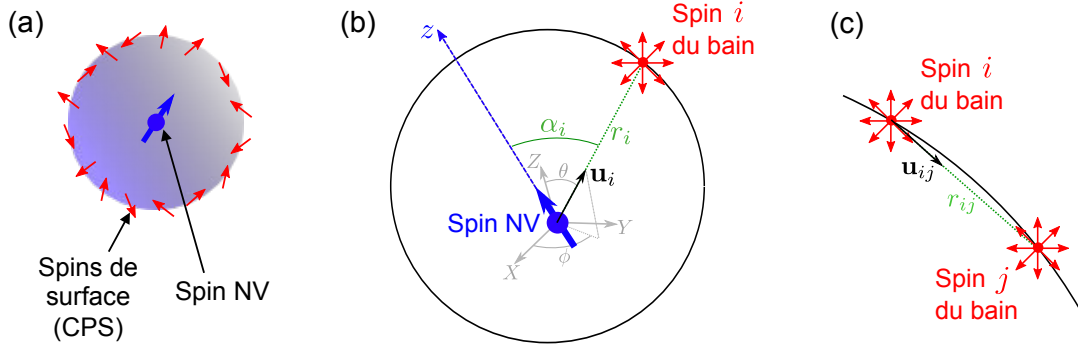


FIGURE 4.5 – (a) Le nanodiamant est modélisé par une sphère de diamètre d_0 et un bain de spins de surface fluctuant aléatoirement, avec une densité surfacique σ . (b) Notations pour le calcul de la variance du champ magnétique au niveau du centre NV. L’axe de quantification du centre NV est noté z . Le référentiel XYZ , dans lequel sont définis les angles sphériques (θ, ϕ) qui décrivent la position des spins du bain, est choisi de manière à faciliter le calcul de l’intégrale (4.19). (c) Notations pour le calcul du taux de fluctuation du bain de spins.

spin. L’effet réciproque du centre NV sur le bain est négligé. En l’absence de champ magnétique externe, $\mathbf{B}(t)$ est nul en moyenne, soit $\langle \mathbf{B}(t) \rangle = \mathbf{0}$, et est caractérisé par des densités spectrales

$$S_{B_k}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} B_k(t) B_k(t + \tau) e^{-i\omega\tau} d\tau . \quad (4.9)$$

Les trois composantes S_{B_k} avec $k = x, y, z$ sont supposées non corrélées. Pour un système de nombre quantique de spin $S = 1$ ayant pour axe de quantification l’axe z , on a [63]

$$k_{01}^{\text{cps}} = \frac{\gamma_e^2}{2} [S_{B_x}(\omega_0) + S_{B_y}(\omega_0)] , \quad (4.10)$$

où $\gamma_e \approx \gamma_{\text{NV}} = \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{\hbar}$ est le facteur gyromagnétique de l’électron et $\omega_0 = 2\pi D$ est la fréquence de transition de spin du centre NV. L’équation (4.10) indique que la relaxation de spin est causée par les composantes transverses du bruit magnétique à la fréquence de résonance de ce spin, soit à $D \approx 2.87$ GHz. En supposant des fonctions de corrélation de la forme

$$\langle B_k(0) B_k(\tau) \rangle = \langle B_k^2 \rangle e^{-|\tau|/\tau_c} \quad (4.11)$$

où τ_c est le temps de corrélation du champ magnétique et $\langle B_k^2 \rangle$ sa variance, le taux de relaxation lié aux CPS s’écrit

$$k_{01}^{\text{cps}} = \gamma_e^2 B_{\perp}^2 \frac{\tau_c}{1 + \omega_0^2 \tau_c^2} . \quad (4.12)$$

En utilisant l’équation (4.8), le taux de relaxation de spin total peut se mettre sous la forme

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^{\text{bulk}}} + 3\gamma_e^2 B_{\perp}^2 \frac{\tau_c}{1 + \omega_0^2 \tau_c^2} , \quad (4.13)$$

où $B_{\perp}^2 = \langle B_x^2 \rangle + \langle B_y^2 \rangle$ représente la variance du champ magnétique transverse.

Nous allons maintenant présenter des calculs simples qui permettent d’estimer la variance B_{\perp}^2 du champ magnétique perpendiculaire à l’axe du centre NV ainsi que son temps de corrélation τ_c .

Calcul de la variance du champ du bain B_{\perp}^2

La variance B_{\perp}^2 du champ magnétique au niveau du centre NV peut être obtenue en sommant les contributions de tous les spins du bain, selon

$$B_{\perp}^2 = \sum_i B_{\perp,i}^2 . \quad (4.14)$$

Le champ dipolaire rayonné par un spin \mathbf{S}_i , positionné en \mathbf{r}_i sur la surface du diamant (figure 4.5b), est donné par

$$\mathbf{B}_i = \frac{\mu_0 \gamma_e \hbar}{4\pi r_i^3} [\mathbf{S}_i - 3(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{u}_i) \mathbf{u}_i] , \quad (4.15)$$

où $\mathbf{u}_i = \mathbf{r}_i / r_i$. Le spin \mathbf{S}_i n'ayant pas de direction privilégiée, il est décrit par une matrice-densité

$$\rho_i = \frac{1}{2S+1} \mathbb{1}_{2S+1} , \quad (4.16)$$

où $\mathbb{1}_{2S+1}$ est la matrice identité de dimension $2S+1$, et S est le nombre quantique des spins du bain. Le champ généré par ce spin a donc pour variance

$$\begin{aligned} B_{\perp,i}^2 &= \langle B_{x,i}^2 \rangle + \langle B_{y,i}^2 \rangle \\ &= \text{Tr}\{\rho_i (B_{x,i}^2 + B_{y,i}^2)\} \\ &= \left(\frac{\mu_0 \gamma_e \hbar}{4\pi} \right)^2 C_S \frac{2 + 3 \sin^2 \alpha_i}{r_i^6} , \end{aligned} \quad (4.17)$$

où α_i est l'angle entre \mathbf{r}_i et l'axe z du centre NV (figure 4.5b), et la constante C_S est définie comme

$$C_S = \frac{1}{2S+1} \sum_{m=-S}^S m^2 = \frac{S(S+1)}{3} . \quad (4.18)$$

Pour un bain de spins électroniques de densité surfacique σ , dont la surface est décrite en coordonnées sphériques par $r = r(\theta, \phi)$ (figure 4.5b), la somme (4.14) sur tous les spins du bain donne finalement

$$B_{\perp}^2 = \left(\frac{\mu_0 \gamma_e \hbar}{4\pi} \right)^2 C_S \sigma \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} d\theta \sin \theta \frac{2 + 3 \sin^2(\alpha(\theta, \phi))}{r(\theta, \phi)^4} . \quad (4.19)$$

Le cas le plus simple correspond à un centre NV situé exactement au centre d'un nanodiamant sphérique de diamètre d_0 . Nous obtenons alors l'expression

$$B_{\perp}^2 = \left(\frac{4\mu_0 \gamma_e \hbar}{\pi} \right)^2 \pi C_S \frac{\sigma}{d_0^4} . \quad (4.20)$$

Notons que la dépendance en d_0^{-4} vient simplement de la dépendance en d_0^{-6} du champ dipolaire d'un spin individuel, \mathbf{B}_i^2 , intégrée sur la surface du nanodiamant. Considérant des spins $S = 1/2$, on trouve $B_{\perp} = 26 \text{ mT} \cdot \text{nm}^3 \times \frac{\sigma^{1/2}}{d_0^2}$, ce qui donne par exemple $B_{\perp} = 260 \text{ } \mu\text{T}$ pour un nanodiamant de 10 nm de diamètre avec $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$. La formule (4.20) peut être facilement généralisée au cas d'un centre NV excentré dans un nanodiamant sphérique.

Calcul du temps de corrélation du bain τ_c

Le temps de corrélation des fluctuations du bain τ_c peut être décomposé en deux contributions principales selon

$$\frac{1}{\tau_c} = R = R_{\text{dip}} + R_{\text{vib}} , \quad (4.21)$$

où R_{dip} est dû au couplage dipolaire intra-bain tandis que R_{vib} est causé par la relaxation de spin due au couplage avec les phonons. Dans une approche simplifiée de champ moyen, R_{dip} peut être obtenu en sommant les interactions dipolaires d'un spin donné \mathbf{S}_i avec tous les autres spins \mathbf{S}_j du bain selon

$$\hbar R_{\text{dip}} = \sqrt{\sum_{j \neq i} \langle H_{ij}^2 \rangle} , \quad (4.22)$$

où H_{ij} est l'interaction dipolaire magnétique

$$H_{ij} = \frac{\mu_0 \gamma_e^2 \hbar^2}{4\pi r_{ij}^3} [\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - 3(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{u}_{ij})(\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{u}_{ij})] . \quad (4.23)$$

Ici, \mathbf{r}_{ij} est le rayon-vecteur entre les deux spins et $\mathbf{u}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/r_{ij}$ (figure 4.5c). Pour des mélanges parfaits des états de spin, la matrice-densité décrivant le système à deux spins est

$$\rho_{ij} = \frac{1}{(2S+1)^2} \mathbb{1}_{2S+1} \otimes \mathbb{1}_{2S+1} . \quad (4.24)$$

On en déduit

$$\begin{aligned} \langle H_{ij}^2 \rangle &= \text{Tr}\{\rho_{ij} H_{ij}^2\} \\ &= \left(\frac{\mu_0 \gamma_e^2 \hbar^2}{4\pi} \right)^2 \frac{6C_S^2}{r_{ij}^6} . \end{aligned} \quad (4.25)$$

Pour évaluer la somme (4.22) sur un bain surfacique de densité σ , on utilise l'approximation

$$\sum_{j \neq i} \frac{1}{r_{ij}^6} \approx \sigma \int_{r_{\min}}^{+\infty} \frac{2\pi r}{r^6} dr , \quad (4.26)$$

où r_{\min} est la distance minimum autorisée entre deux spins du bain. On prendra par la suite $r_{\min} = 0.15$ nm, qui correspond à la distance inter-atomique minimum dans le diamant. Après intégration, le taux de fluctuation R_{dip} s'écrit finalement

$$\hbar R_{\text{dip}} = \frac{\mu_0 \gamma_e^2 \hbar^2 \sqrt{6} C_S}{4\pi} \sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\sigma^{1/2}}{r_{\min}^2} . \quad (4.27)$$

Pour un bain de spins $S = 1/2$, on trouve $R_{\text{dip}} = 11 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{nm} \times \sigma^{1/2}$, soit $R_{\text{dip}} = 11 \text{ ns}^{-1} = 2\pi \times 1.8 \text{ GHz}$ en prenant $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$.

Quant à la contribution vibrationnelle R_{vib} , on peut l'estimer à partir de la littérature. Plusieurs études par résonance paramagnétique électronique effectuées sur différents types de nanodiamants rapportent des valeurs de R_{vib} entre 1 et 2 ns^{-1} [187, 192], voire plus faibles [188, 193]. Ces valeurs sont bien plus petites que celle de R_{dip} calculée ci-dessus avec $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$. Par conséquent, la contribution vibrationnelle sera négligée par la suite, de sorte que $R \approx R_{\text{dip}}$.

Comparaison aux données

En remplaçant l'expression (4.20) dans l'équation (4.13), valable pour un centre NV situé au centre d'un nanodiamant de diamètre d_0 , le taux de relaxation s'écrit

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^{\text{bulk}}} + \left(\frac{48\mu_0^2\gamma_e^4\hbar^2 C_s}{\pi d_0^4} \right) \left(\frac{\sigma R(\sigma)}{\omega_0^2 + R(\sigma)^2} \right), \quad (4.28)$$

où $R(\sigma) = 1/\tau_c \approx R_{\text{dip}}(\sigma)$ est donné par l'équation (4.27). Le second terme de l'équation (4.28), qui est le terme dominant dans les nanodiamants, varie en d_0^{-4} . C'est cette forte dépendance qui est à l'origine des variations importantes du temps T_1 en fonction de la taille du nanodiamant. Notons que la formule (4.28) peut être généralisée au cas d'un centre NV excentré dans un nanodiamant sphérique à l'aide de l'équation (4.19).

La figure 4.6a compare les points expérimentaux de $1/T_1$ en fonction de d_0 aux courbes théoriques issues du modèle. Le calcul est effectué pour deux cas extrêmes (figure 4.6b) :

1. le centre NV est situé au centre de la sphère ('cas 1', équation (4.28)) ;
2. le centre NV est situé à 3 nm sous la surface du nanodiamant – proche de la limite de photostabilité du centre NV [194] – avec l'axe de quantification parallèle à la surface ('cas 2').

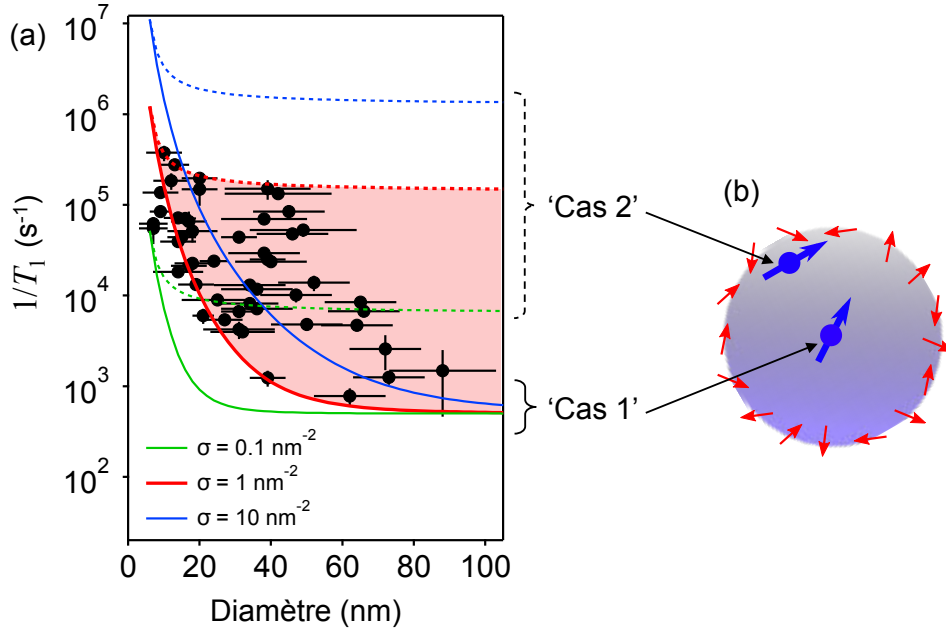


FIGURE 4.6 – (a) Le nuage de points représente les données expérimentales de $1/T_1$ en fonction du diamètre d_0 du nanodiamant, tirées de la figure 4.4a. Les courbes sont le résultat du modèle d'un bain de spins de surface schématisé en (b). (b) Schéma illustrant les deux cas extrêmes considérés pour le calcul. Dans le 'cas 1', le centre NV est situé au centre de la sphère. Dans le 'cas 2', il est situé à 3 nm en-dessous de la surface, avec un axe de quantification parallèle à la surface. Dans (a), les lignes continues correspondent au 'cas 1', les lignes pointillées au 'cas 2'. Les paramètres du calcul sont $T_1^{\text{bulk}} = 2$ ms et $\sigma = 0.1 \text{ nm}^{-2}$ (lignes vertes), $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$ (lignes rouges) ou $\sigma = 10 \text{ nm}^{-2}$ (lignes bleues). La zone colorée en rouge indique les valeurs intermédiaires entre les cas 1 et 2 pour une densité $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$.

Le seul paramètre libre étant la densité surfacique σ , trois valeurs de σ différentes sont testées. On constate que dans le cas où $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$, les points expérimentaux sont dans l'ensemble situés entre ces deux courbes extrêmes (zone colorée en rouge), suggérant que le modèle décrit bien la dépendance en taille du temps T_1 . De plus, une densité $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$ est cohérente avec l'ordre de grandeur estimé avec d'autres méthodes par Tisler et collègues pour des nanodiamants comparables [191].

Ainsi, selon ce modèle, le temps de relaxation de spin des centres NV dans les nanodiamants est dominé par le bruit magnétique produit par des spins intrinsèques à la surface du nanodiamant. Le qualificatif "intrinsèque" précise que ces spins sont liés essentiellement à la structure carbonée du nanodiamant et ses terminaisons, par opposition aux éventuels spins extrinsèques liés par exemple aux contaminants. Ces derniers seront l'objet de la section suivante.

4.3 Détection de molécules paramagnétiques par relaxométrie de spin

Dans la section précédente, nous avons vu que la relaxation du spin du centre NV dans les nanodiamants est dominée par le bruit magnétique induit par les spins intrinsèques à la surface du nanodiamant. Par conséquent, la mesure du temps de relaxation T_1 devrait permettre de détecter des changements d'environnement magnétique liés soit à une altération de la surface du nanodiamant, soit à un objet magnétique fluctuant amené à proximité du nanodiamant.

Pour tester cela, nous avons déposé des molécules paramagnétiques sur les nanodiamants et avons étudié leur effet sur les centres NV contenus dans ces nanodiamants. Nous avons observé une réduction significative du temps T_1 , validant ainsi la capacité à détecter des molécules externes par relaxométrie de spin (§ 4.3.1). Nous avons également observé un effet sur les propriétés optiques des centres NV, qui sera analysé par un modèle de la photodynamique du centre NV (§ 4.3.2). Enfin, la sensibilité de cette méthode de relaxométrie de spin sera discutée (§ 4.3.3).

4.3.1 Réduction du temps de relaxation T_1

Les molécules que nous avons utilisées sont des molécules de perchlorate de gadolinium(III), de formule chimique $\text{Gd}(\text{ClO}_4)_3$. La solution mère, fournie par Sigma-Aldrich, est concentrée à 40% en poids dans de l'eau, soit une concentration d'environ 1 mol/L, abrégée 1 M par la suite. Le paramagnétisme de la molécule vient de l'ion Gd^{3+} . Celui-ci possède un nombre quantique de spin élevé $S' = 7/2$, et surtout un spectre de fluctuations très large, ce qui en fait un agent de contraste par relaxation couramment utilisé en imagerie par résonance magnétique [195, 196].

La procédure expérimentale que nous avons suivie est la suivante. Les nanodiamants sont dispersés sur une lame de verre munie d'une grille métallique de repérage. Dans un premier temps, un certain nombre de nanodiamants contenant un centre NV unique est repéré, et chaque nanodiamant est caractérisé. La caractérisation comprend une mesure de la courbe de relaxation $I(\tau)$ du centre NV pour en extraire le temps T_1 , ainsi qu'une mesure AFM pour estimer la taille du nanodiamant. Des étapes de traitement avec la solution de gadolinium sont ensuite appliquées. Après chaque traitement, la grille de repérage

permet de retrouver les nanodiamants déjà caractérisés, et la courbe de relaxation $I(\tau)$ est mesurée à nouveau.

Pour la première étape de traitement, une goutte de la solution de gadolinium diluée à 1 mM est déposée sur la lame. Le séchage de la goutte conduit à l'adsorption des molécules à la surface des nanodiamants. Pour la deuxième étape de traitement, une goutte concentrée à 10 mM est ajoutée. Nous avons ainsi caractérisé et appliqué ces deux traitements à 33 centres NV situés dans des nanodiamants distincts.

Il est commode de regarder d'abord l'effet statistique des deux traitements au gadolinium sur l'ensemble des nanodiamants étudiés. Les histogrammes des taux de relaxation $\Gamma_1 = 1/T_1$ sont montrés dans la figure 4.7 pour les trois cas suivants :

1. avant tout traitement ;
2. après le premier traitement avec 1 mM de solution ;
3. après le second traitement avec 10 mM de solution.

La distribution est clairement décalée vers des valeurs de Γ_1 plus élevées après chaque traitement supplémentaire, ce qui indique que le spin des centres NV est sensible au bruit magnétique induit par les spins des ions Gd^{3+} .

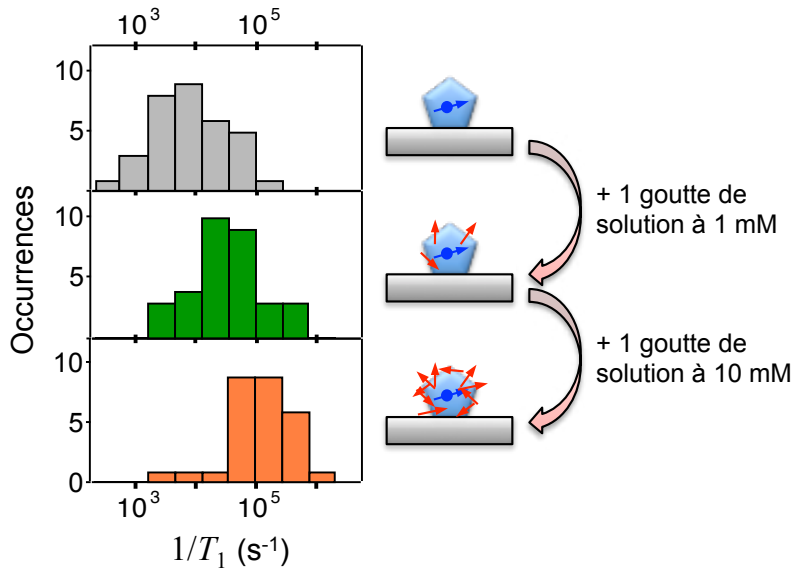


FIGURE 4.7 – Histogrammes des taux de relaxation de spin $\Gamma_1 = 1/T_1$ obtenus à partir d'un ensemble de 33 centres NV individuels dans des nanodiamants distincts. La mesure est effectuée avant tout traitement (graphe du haut), après ajout de 1 mM de solution de gadolinium (graphe du milieu) et après ajout supplémentaire de 10 mM de solution (graphe du bas).

Plutôt que de regarder l'effet moyen sur un ensemble de nanodiamants, on peut examiner l'effet des traitements sur chaque nanodiamant individuellement. La figure 4.8 montre ainsi le nuage de points des taux de relaxation après traitement, noté $\Gamma_1^{\text{tr}} = 1/T_1^{\text{tr}}$, en fonction du taux avant traitement, noté $\Gamma_1^{\text{int}} = 1/T_1^{\text{int}}$, pour les 33 centres NV étudiés. On voit ainsi que la plupart des points sont au-dessus de la ligne pointillée de référence, correspondant au cas où T_1 est inchangé. En outre, il ne semble pas y avoir de corrélation

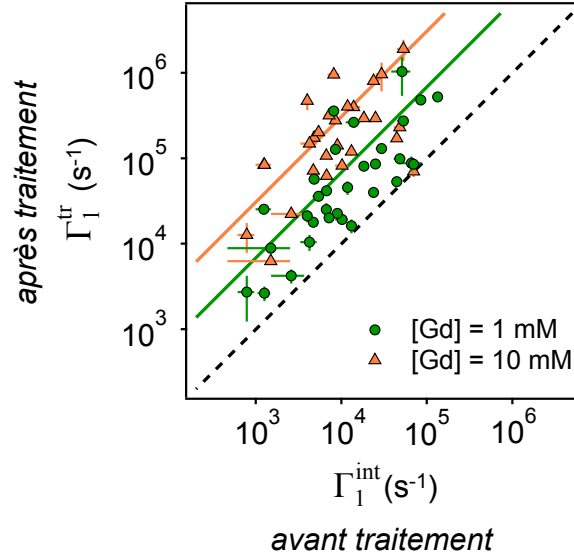


FIGURE 4.8 – Nuage de points représentant le taux de relaxation mesuré pour des centres NV individuels après le premier traitement (cercles verts) et après le second (triangles oranges) en fonction du taux de relaxation mesuré avant tout traitement. Les lignes continues correspondent à la valeur moyenne du facteur d'exaltation de la relaxation $\eta_{\text{tr}} = \Gamma_1^{\text{tr}}/\Gamma_1^{\text{int}}$, qui vaut $\eta_{\text{tr}} = 7$ pour le premier traitement (ligne verte) et $\eta_{\text{tr}} = 31$ pour le deuxième (ligne orange). La ligne pointillée noire correspond à $\eta_{\text{tr}} = 1$ et sert de référence.

de l'intensité de l'effet avec la valeur du taux de relaxation initial, et donc avec la taille du nanodiamant. En définissant un facteur d'exaltation de la relaxation

$$\eta_{\text{tr}} = \frac{\Gamma_1^{\text{tr}}}{\Gamma_1^{\text{int}}} = \frac{T_1^{\text{int}}}{T_1^{\text{tr}}} , \quad (4.29)$$

on trouve en moyenne $\eta_{\text{tr}} = 7$ après le premier traitement, et $\eta_{\text{tr}} = 31$ après le second traitement. Ces valeurs moyennes sont représentées par les lignes continues dans la figure 4.8. La dispersion des points autour des valeurs moyennes peut s'expliquer par la non uniformité des molécules adsorbées à la surface des nanodiamants, qui fait que certains centres NV subissent un effet plus important que d'autres. En particulier, les centres NV proches de l'interface avec le substrat (ici une lame de verre) devraient être moins affectés par le traitement, car mieux protégés.

À partir du facteur d'exaltation η_{tr} , il est possible d'estimer la densité σ' de spins $S' = 7/2$ ajoutés à la surface des nanodiamants. Pour cela, nous supposons que les spins $7/2$ constituent un bain de spins de surface qui n'interagit pas avec le bain intrinsèque de spins $S = 1/2$. Ce bain additionnel produit un champ magnétique fluctuant de variance B_{\perp}^2 et de temps de corrélation τ_c' . En négligeant le taux de relaxation Γ_1^{bulk} dû aux interactions avec les phonons, le taux de relaxation de spin du centre NV est alors la somme des contributions des deux bains, soit

$$\Gamma_1^{\text{tr}} = \Gamma_1^{\text{int}} + \Gamma_1^{\text{Gd}} . \quad (4.30)$$

D'après les équations (4.19) et (4.27), on peut écrire B_{\perp}^2 et τ_c sous les formes générales

$$B_{\perp}^2 = A_{\text{forme}} C_S \sigma \quad (4.31)$$

$$\frac{1}{\tau_c} = K C_S \sigma^{1/2}, \quad (4.32)$$

où A_{forme} dépend uniquement de la forme du nanodiamant et de la position relative du centre NV, et K est une constante. En introduisant ces expressions dans l'équation (4.12) puis dans l'équation (4.30), on obtient une expression simple du facteur d'exaltation

$$\begin{aligned} \eta_{\text{tr}} = \frac{\Gamma_1^{\text{tr}}}{\Gamma_1^{\text{int}}} &= 1 + \frac{C_{S'} \sigma'}{C_S \sigma} \times \frac{C_S \sigma^{1/2}}{C_{S'} \sigma'^{1/2}} \times \frac{1 + \omega_0^2 \tau_c^2}{1 + \omega_0^2 \tau_c'^2} \\ &\approx 1 + 3.64 \left(\frac{\sigma'}{\sigma} \right)^{1/2}. \end{aligned} \quad (4.33)$$

La dernière ligne a été obtenue en évaluant directement $1 + \omega_0^2 \tau_c^2 = 3.64$ pour une densité $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$ et en supposant $1/\tau_c' \gg \omega_0$, ce qui sera vérifié a posteriori. Notons que la contribution vibrationnelle de τ_c' est négligée devant la contribution dipolaire, ce qui sera également vérifié a posteriori. L'équation (4.33) montre que η_{tr} ne dépend pas de la forme ni de la taille du nanodiamant, puisque le facteur A_{forme} n'y apparaît pas.

On peut maintenant en déduire la densité de spins $7/2$ à partir du facteur d'exaltation η_{tr} mesuré. On trouve $\sigma' \approx 3\sigma \approx 3 \text{ nm}^{-2}$ lors de l'ajout de 1M de solution, et $\sigma' \approx 70\sigma \approx 70 \text{ nm}^{-2}$ lors de l'ajout de 10M de solution. En termes de nombre de molécules de gadolinium, cela correspond, pour un nanodiamant de 10 nm de diamètre, à un ajout de 1000 et 20000 molécules, respectivement. On calcule alors que $R'_{\text{dip}} = 400 \text{ ns}^{-1}$ pour $\sigma' = 3 \text{ nm}^{-2}$, qui est en effet bien plus grand que les valeurs typiques de la contribution vibrationnelle ($R'_{\text{vib}} \sim 50 \text{ ns}^{-1}$ [197]) et que $\omega_0 = 18 \text{ ns}^{-1}$.

4.3.2 Réduction du contraste optique

Dans la section précédente, nous avons examiné les conséquences de l'ajout de molécules de gadolinium sur le temps de relaxation de spin du centre NV. Cependant, nous avons observé que cet ajout a aussi des conséquences sur ses propriétés optiques. Autrement dit, l'augmentation du bruit magnétique affecte non seulement la dynamique du centre NV dans le noir mais aussi sous excitation optique. Ce deuxième effet est plus particulièrement visible dans le régime des faibles temps de relaxation T_1 . Pour atteindre ce régime, nous avons appliqué plusieurs étapes de traitement supplémentaires avec la même solution de gadolinium que précédemment. La courbe de relaxation $I(\tau)$ est mesurée après chaque nouvelle étape, qui a pour effet de diminuer T_1 . Quelques courbes ainsi obtenues sont montrées dans les figures 4.9a et 4.9b pour deux centres NV individuels dans des nanodiamants distincts.

On observe dans les deux cas que la réduction du temps T_1 s'accompagne d'une réduction de l'amplitude de la décroissance du signal de fluorescence. Autrement dit, le contraste optique qui permet d'observer la relaxation de spin diminue. Pour quantifier cet effet, nous définissons un contraste effectif

$$C_1^{\text{eff}} = \frac{\max[I(\tau)]}{I(\infty)} - 1, \quad (4.34)$$

où le maximum est pris sur la courbe d'ajustement des données – plutôt que sur les données elles-mêmes – pour réduire l'influence du bruit. La figure 4.9c montre les points

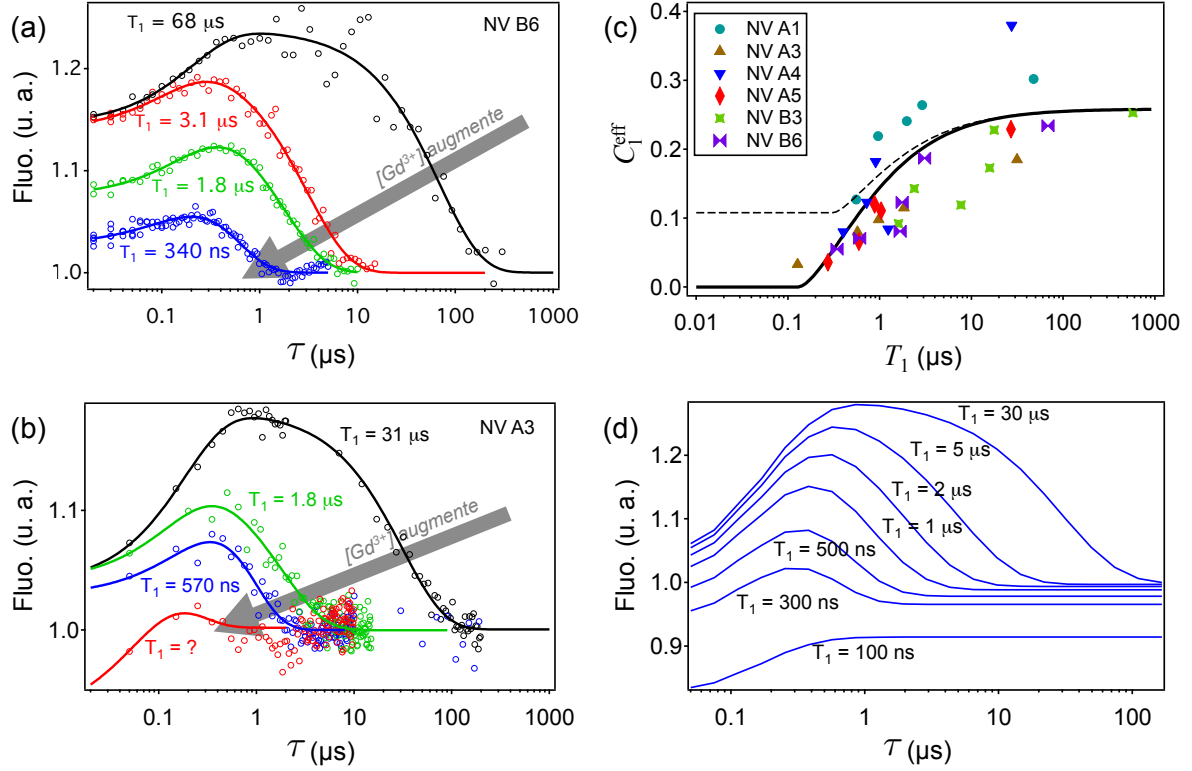


FIGURE 4.9 – (a,b) Courbes de relaxation $I(\tau)$ mesurées après différentes étapes successives de traitement avec la solution de gadolinium, permettant de raccourcir progressivement le temps de relaxation T_1 . Les points sont les données expérimentales, les lignes continues sont l’ajustement par l’équation (4.6). Sont montrés les cas de deux centres NV désignés comme NV A3 (a) et NV B6 (b). (c) Contraste de T_1 effectif mesuré pour différents centres NV en fonction de T_1 , qui a été diminué progressivement en ajoutant des molécules de gadolinium. La ligne pointillée est obtenue à partir de l’équation (4.6) en fixant $C_1 = 0.26$, $C_m = 0.1$ et $T_m = 200$ ns. La ligne continue est obtenue en résolvant la dynamique complète du centre NV, sans paramètre d’ajustement (voir texte). (d) Courbes $I(\tau)$ théoriques obtenues en résolvant la dynamique complète du centre NV pour différents temps T_1 .

expérimentaux de C_1^{eff} en fonction de T_1 obtenus pour différents centres NV, en incluant ceux des figures 4.9a et 4.9b. L’effet de réduction du contraste lorsque T_1 est diminué est observé pour tous les centres NV étudiés.

Lorsque $T_1 \gg T_m$, on a par définition $C_1^{\text{eff}} = C_1$ d’après l’équation (4.6). Lorsque T_1 se rapproche de T_m , les deux exponentielles dans l’équation (4.6) se recouvrent partiellement, ce qui réduit le contraste effectif. Le calcul de C_1^{eff} à partir de l’équation (4.6) en supposant C_1 et C_m constants est montré dans la figure 4.9c (ligne pointillée). Le contraste minimum est obtenu pour $T_1 = T_m$ et vaut alors $(C_1 - C_m)$. Ces considérations montrent que le recouvrement entre les deux exponentielles a un effet significatif sur C_1^{eff} , mais ne suffit pas à expliquer pourquoi C_1^{eff} s’annule pour des valeurs assez petites de T_1 .

Un autre effet est que le coefficient C_1 dans l’équation (4.6) dépend en réalité du temps T_1 . Comme l’indique l’équation (4.7), C_1 dépend de l’efficacité de polarisation du spin dans l’état $|m_s = 0\rangle$ lors de l’impulsion laser d’initialisation, ainsi que de la différence des taux de fluorescence ($A_0 - A_1$) lors de l’impulsion de lecture. Or les processus de polarisation et

de lecture de l'état de spin par excitation optique sont intrinsèquement gouvernés par la durée de vie du niveau métastable T_m (cf. § 1.2). Par conséquent, ces processus deviennent inefficaces lorsque $T_1 \sim T_m$, et le coefficient C_1 tend alors à s'annuler.

Pour vérifier ces hypothèses, nous avons calculé la dynamique du centre NV sous excitation optique en prenant en compte l'effet de la relaxation de spin dans le niveau fondamental. Pour cela, nous utilisons le modèle à sept niveaux décrit au chapitre 1 (cf. § 1.4.1), auquel on ajoute un taux de relaxation bidirectionnel $k_{01} = 1/3T_1$ entre l'état $|m_s = 0\rangle$ et les états $|m_s = \pm 1\rangle$ du niveau fondamental. On peut ainsi prédire les traces fluorescence lors de l'impulsion laser de lecture, puis en déduire la courbe de relaxation $I(\tau)$ théorique. La figure 4.9d montre les courbes $I(\tau)$ ainsi calculées pour différentes valeurs de T_1 , en bon accord qualitatif avec les courbes expérimentales. De plus, on peut prédire le contraste effectif C_1^{eff} défini par l'équation (4.34). La courbe de C_1^{eff} en fonction de T_1 calculée avec ce modèle est tracée dans la figure 4.9c (ligne continue) et reproduit bien, en moyenne, les données expérimentales. Notons qu'il n'y a aucun paramètre d'ajustement dans ce calcul.

Cet effet de réduction de contraste impose une limite inférieure aux temps T_1 qui peuvent être mesurés, typiquement $T_1 > T_m \approx 200$ ns. Pour un centre NV au centre d'un nanodiamant de 10 nm de diamètre, cette limite inférieure sur T_1 correspond à une limite supérieure de densité de spins de $\sigma < 80 \text{ nm}^{-1}$, soit $B_\perp < 2.3 \text{ mT}$.

4.3.3 Sensibilité de la méthode

Nous avons vu dans la section 4.3.1 que la relaxométrie de spin avec le centre NV permet de détecter la présence d'espèces paramagnétiques additionnelles, telles que des molécules adsorbées à la surface du nanodiamant. Nous allons maintenant évaluer la sensibilité de cette méthode, c'est-à-dire le plus petit nombre de spins additionnels pouvant être détectés en un temps d'acquisition donné.

Nous considérons pour cela un centre NV situé au centre d'un nanodiamant de diamètre d_0 , possédant un bain de spins électroniques de surface $S = 1/2$ avec une densité initiale σ . Le nombre de spins en surface vaut $\mathcal{N}_e = \sigma \pi d_0^2$. Nous cherchons à calculer le plus petit nombre de spin supplémentaires $\delta \mathcal{N}_e$ détectable avec un rapport signal-sur-bruit (RSB) de 1. Nous nous placerons dans le cadre du protocole de détection à un seul temps τ proposé par Steinert et collègues [198] (figure 4.10a). Cela permet de mesurer une quantité qui dépend de T_1 , en l'occurrence l'intensité $I(\tau_0)$ pour un temps d'attente $\tau = \tau_0$ fixé, sans avoir à mesurer la courbe $I(\tau)$ complète (figure 4.10b).

On supposera pour simplifier les expressions que $\tau_0 \gg (T_m, T_{\text{pulse}})$, où T_{pulse} est la durée des impulsions laser. Le nombre de photons détectés en répétant la séquence pendant un temps total T_{tot} peut s'écrire,

$$N(\Gamma_1) \approx \frac{\mathcal{R} T_{\text{int}}}{\tau_0} T_{\text{tot}} [1 + C_1 e^{-\Gamma_1 \tau_0}] , \quad (4.35)$$

où \mathcal{R} est le taux de comptage des photons sous illumination optique continue, $T_{\text{int}} = 300$ ns est la largeur de la fenêtre d'intégration, et C_1 est le contraste. Lorsque le taux de relaxation Γ_1 est augmenté d'une quantité infinitésimale $\delta \Gamma_1$, le nombre total de photons détectés est diminué de

$$\delta N_{\text{signal}} \approx \delta \Gamma_1 \mathcal{R} T_{\text{int}} T_{\text{tot}} C_1 e^{-\Gamma_1 \tau_0} . \quad (4.36)$$

Pour un bruit de mesure dû exclusivement au "bruit de grenaille" (*shot noise*) de la

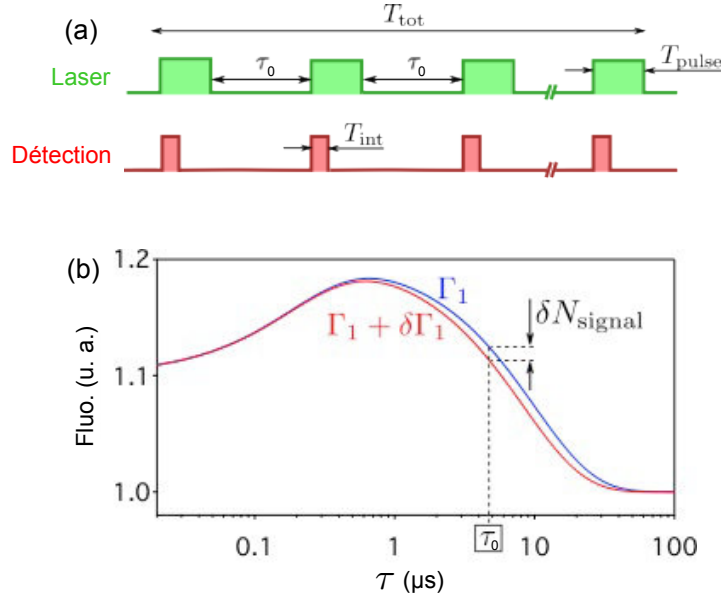


FIGURE 4.10 – (a) Séquence utilisée dans le protocole de détection à $\tau = \tau_0$, qui consiste en une seule impulsion laser répétée de nombreuses fois. Le délai entre les impulsions est fixé à τ_0 , et la durée d'impulsion vaut $T_{\text{pulse}} \sim 1 \mu\text{s}$. (b) Courbe $I(\tau)$ calculée avec un taux de relaxation de spin $\Gamma_1 = 0.1 \text{ s}^{-1}$ (courbe bleue). La courbe rouge illustre l'effet d'une augmentation de ce taux de $\delta\Gamma_1 = 0.2\Gamma_1$. Le protocole à un seul τ permet de sonder la variation de fluorescence pour un temps $\tau = \tau_0$ fixé, notée δN_{signal} et liée à la variation $\delta\Gamma_1$.

détection des photons, l'incertitude sur le nombre total de photons détectés vaut

$$\delta N_{\text{bruit}} = \sqrt{N(\Gamma_1)} \approx \sqrt{\frac{\mathcal{R}T_{\text{int}}T_{\text{tot}}}{\tau_0}}, \quad (4.37)$$

où l'on a pris $C_1 \ll 1$ pour simplifier. Le rapport signal-sur-bruit s'écrit alors

$$\text{RSB} = \frac{\delta N_{\text{signal}}}{\delta N_{\text{bruit}}} = \delta\Gamma_1 \sqrt{\mathcal{R}T_{\text{int}}T_{\text{tot}}\tau_0} C_1 e^{-\Gamma_1\tau_0}. \quad (4.38)$$

Le rapport maximum RSB_m est obtenu pour $\tau_0 = T_1/2$ et vaut

$$\text{RSB}_m = \frac{\delta\Gamma_1}{\sqrt{\Gamma_1}} C_1 \sqrt{\frac{\mathcal{R}T_{\text{int}}T_{\text{tot}}}{2e}}. \quad (4.39)$$

Ainsi, pour un changement $\delta\Gamma_1$ donné, RSB_m est amélioré lorsque Γ_1 décroît. Cependant, les quantités $\delta\Gamma_1$ and Γ_1 ne sont pas indépendantes, comme nous allons le voir.

D'après les équations (4.27) et (4.28), le taux de relaxation de spin dû au bain de spins électroniques de surface peut être écrit comme

$$\Gamma_1(\sigma) = \frac{A}{d_0^4} \frac{\sigma^{3/2}}{\sigma + B}, \quad (4.40)$$

avec $A = 5.75 \times 10^9 \text{ s}^{-1}\text{nm}^5$ et $B = 2.64 \text{ nm}^{-2}$. On cherche à calculer l'effet d'une augmentation infinitésimale $\delta\sigma$ de la densité surfacique de spin. Le taux de relaxation de spin devient

$$\Gamma_1(\sigma + \delta\sigma) = \Gamma_1(\sigma) + \delta\Gamma_1, \quad (4.41)$$

avec

$$\frac{\delta\Gamma_1}{\Gamma_1(\sigma)} = \frac{\delta\sigma}{\sigma} \left(\frac{1}{2} + \frac{B}{B+\sigma} \right) . \quad (4.42)$$

En insérant les équations (4.40) et (4.42) dans l'équation (4.39), on obtient finalement

$$\text{RSB}_m = \delta\sigma \times \frac{C_1}{2d_0^2} \sqrt{\frac{A\mathcal{R}T_{\text{int}}T_{\text{tot}}}{2e}} \frac{\sigma + 3B}{\sigma^{1/4}(\sigma + B)^{3/2}} . \quad (4.43)$$

On constate que pour un $\delta\sigma$ donné, RSB_m est d'autant plus grand que le diamètre d_0 est petit et que la densité initiale σ est petite.

La quantité RSB_m peut être exprimée en fonction du nombre de spins additionnels $\delta\mathcal{N}_e$, ce qui donne

$$\text{RSB}_m = \delta\mathcal{N}_e \times \frac{C_1}{2\pi d_0^4} \sqrt{\frac{A\mathcal{R}T_{\text{int}}T_{\text{tot}}}{2e}} \frac{\sigma + 3B}{\sigma^{1/4}(\sigma + B)^{3/2}} . \quad (4.44)$$

Du fait de la dépendance en d_0^{-4} , il est crucial d'utiliser un nanodiamant aussi petit que possible dans le but de détecter une augmentation $\delta\mathcal{N}_e$ donnée. Le plus petit nombre de spins additionnels qui peut être détecté, en imposant un RSB de 1, vaut finalement

$$\delta\mathcal{N}_{e,\text{min}} = \frac{1}{\mathcal{P}\sqrt{T_{\text{tot}}}} d_0^4 f(\sigma) , \quad (4.45)$$

où $\mathcal{P} = \frac{C_1}{2\pi} \sqrt{\frac{A\mathcal{R}T_{\text{int}}}{2e}}$ et $f(\sigma) = \frac{\sigma^{1/4}(\sigma+B)^{3/2}}{\sigma+3B}$ est une fonction qui varie lentement avec σ . Par exemple, pour un centre NV dans un nanodiamant de 10 nm de diamètre avec une densité initiale de spins $\sigma = 1 \text{ nm}^{-2}$, ce qui correspond à $\mathcal{N} = 314$ et $T_1 = 6.3 \text{ } \mu\text{s}$, on trouve $\delta\mathcal{N}_{e,\text{min}} \approx 14$ spins en 10 s d'intégration, en prenant $\mathcal{R} = 10^5 \text{ s}^{-1}$ et $C_1 = 0.2$.

Ce résultat montre que la relaxométrie de spin avec le centre NV du diamant peut permettre de détecter des très petites fluctuations du nombre de spins – jusqu'à quelques spins – à la surface du nanodiamant sur une échelle de temps de l'ordre de la minute. On pourrait ainsi envisager d'utiliser cette technique pour étudier par exemple les modifications de la chimie de surface (terminaison, adsorption de molécules) en réponse à des variations environnementales (température, pression, humidité). Le centre NV pourrait également être utilisé comme capteur d'espèces chimiques en phase liquide ou gazeuse, en plongeant le nanodiamant directement dans le liquide ou dans le gaz.

4.4 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que le centre NV du diamant peut être utilisé pour détecter le bruit magnétique local. La méthode est basée sur la mesure, par des moyens optiques, du temps de relaxation T_1 de l'état de spin électronique associé au centre NV. Ce temps T_1 dépend directement du bruit magnétique à la fréquence de 2.87 GHz, qui est la fréquence de transition de spin du centre NV. Nous avons illustré cette méthode en détectant le bruit magnétique généré par des molécules de gadolinium adsorbées à la surface des nanodiamants.

En parallèle du travail présenté ici, plusieurs équipes ont également exploré la relaxométrie de spin avec le centre NV du diamant. En utilisant un centre NV proche de la surface dans un diamant massif, Sushkov et collègues ont récemment démontré la détection d'une molécule unique, illustrant l'extrême sensibilité de la méthode [199]. Des

applications dans un contexte biologique ont également été réalisées. Des centres NV dans des nanodiamants ont ainsi permis de détecter des molécules de ferritine [200], ou encore des atomes de gadolinium intégrés dans un modèle de membrane cellulaire [201]. Par ailleurs, Steinert et collègues ont employé des ensembles de centres NV pour mesurer la concentration en ions gadolinium dans un canal microfluidique, et ont également imagé une cellule individuelle par relaxométrie de spin [198, 202].

En outre, un certain nombre d'autres techniques ont été développées pour mesurer le bruit magnétique avec le centre NV. Plutôt que de mesurer la relaxation longitudinale de l'état de spin, ces techniques mesurent sa *décohérence*. En effet, le temps de cohérence T_2 d'une superposition quantique du type $\frac{1}{\sqrt{2}}(|m_s = 0\rangle + |m_s = +1\rangle)$ est également sensible au bruit magnétique. Selon le protocole employé, ce temps T_2 est sensible à différentes fréquences dans le spectre de bruit, généralement entre 1 kHz et 1 MHz [74, 203, 204]. Il est même possible de reconstruire le spectre de bruit magnétique à partir de mesures de cohérence. Ces techniques ont récemment permis d'enregistrer des spectres de résonance magnétique nucléaire sur des échantillons organiques de quelques (nm)³ de volume [6, 7, 205].

Les techniques de mesure du bruit magnétique basées sur le centre NV du diamant ouvrent ainsi de nouvelles opportunités en chimie et en biologie. Il a par exemple été proposé que le centre NV pourrait permettre de déterminer la structure moléculaire d'une protéine complexe [206]. À plus court terme, le centre NV pourrait être utilisé comme capteur très sensible pour aider aux diagnostics médicaux, par exemple pour les maladies du cerveau via la détection d'anomalies dans la distribution du fer [207]. Enfin, le centre NV pourrait également servir de capteur intracellulaire, pour sonder les canaux ioniques individuels [9] ou bien étudier les processus transitoires de formation de radicaux libres.

Conclusion et perspectives

Dans ce mémoire, nous avons introduit et utilisé des nouvelles méthodes permettant de caractériser le champ magnétique à l'échelle nanométrique. Ces méthodes sont basées sur le défaut azote-lacune du diamant, ou centre NV, qui sert de magnétomètre de dimension atomique. Nous avons en particulier réalisé un nouveau type de microscope de champ magnétique, en plaçant un centre NV unique sur la pointe d'un microscope à force atomique. Ce microscope permet de cartographier le champ magnétique produit par un échantillon de manière quantitative, vectorielle, tri-dimensionnelle, non invasive, et avec une résolution nanométrique, le tout aux conditions ambiantes.

Un domaine d'application immédiat du microscope à centre NV est le nanomagnétisme. Nous avons notamment mis en évidence, à l'aide de notre microscope, l'existence d'une interaction Dzyaloshinskii-Moriya interfaciale dans un système de couches ferromagnétiques ultraminces. Or il a été prédit qu'une telle interaction devrait permettre de stabiliser des objets magnétiques localisés, appelés skyrmions magnétiques [160, 208] (figure 4.11a). Des preuves expérimentales ont d'ailleurs été obtenues récemment dans

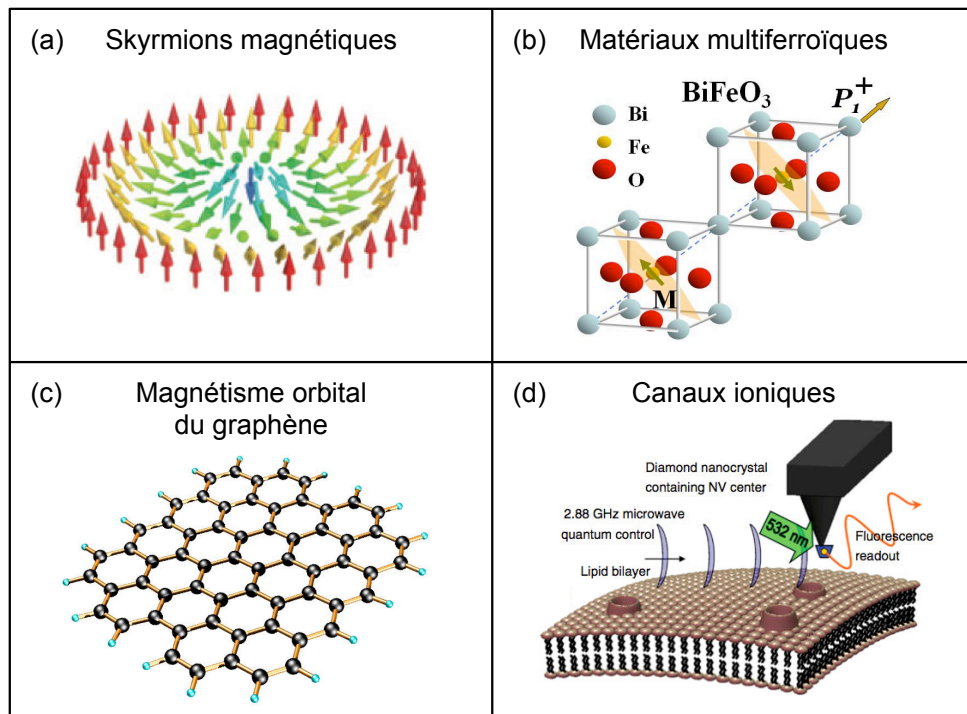


FIGURE 4.11 – Illustration de quelques applications potentielles de la microscopie à centre NV : (a) la détection de skyrmions magnétiques dans les couches ferromagnétiques ultraminces, (b) l'étude locale du couplage magnéto-électrique dans les films minces multiferroïques multidomaines, (c) l'étude locale de la réponse diamagnétique orbitale du graphène autour du point de Dirac, (d) la détection des flux ioniques à travers une membrane cellulaire via les canaux ioniques. L'image (d) est tirée de la référence [9].

des systèmes modèles [165]. Dans un futur proche, le microscope à centre NV pourrait donc permettre d'observer et étudier des skyrmions dans des structures complexes, telles que des pistes magnétiques ou des microplots, ouvrant la voie au développement d'une nouvelle génération de dispositifs spintroniques.

Au-delà des matériaux ferromagnétiques, d'autres domaines de la matière condensée impliquant des spins pourraient bénéficier de la microscopie à centre NV. Un exemple notable est le couplage magnéto-électrique dans les matériaux multiferroïques, tels que l'oxyde BiFeO_3 (figure 4.11b). Il existe en effet des questions ouvertes quant aux échelles de longueur de ce couplage dans les films minces multidomaines, qui pourraient potentiellement être résolues par des mesures locales du champ magnétique [120].

Le champ magnétique trouve sa source non seulement dans les moments magnétiques des constituants de la matière, mais aussi dans les mouvements de charges électriques. Ainsi, la microscopie à centre NV pourrait être utilisée pour détecter des courants de charge, aussi bien des électrons dans les solides que des ions dans les liquides ou dans les échantillons biologiques. Un exemple d'application potentielle est l'étude du magnétisme orbital dans le graphène (figure 4.11c). Il a en effet été prédit que la susceptibilité magnétique associée au diamagnétisme orbital diverge au point de Dirac [209], mais la réponse magnétique orbitale du graphène n'a jamais pu être observée à l'échelle locale jusqu'alors. Pour observer de tels phénomènes, il est nécessaire de travailler à température cryogénique pour réduire les fluctuations thermiques. Un microscope à centre NV fonctionnant à 4 K est d'ailleurs en cours de réalisation dans notre laboratoire.

Enfin, nous avons vu que le centre NV peut également servir de capteur de bruit magnétique. Cette propriété a de nombreuses applications potentielles, particulièrement en biologie. Par exemple, il a été prédit que le passage d'espèces à travers les canaux ioniques des membranes cellulaires pourrait être détecté en mesurant le bruit magnétique généré par les spins nucléaires de ces espèces [9] (figure 4.11d). Cette technique locale et non invasive pourrait aider à la caractérisation de l'action des canaux ioniques, avec des implications importantes pour la biologie moléculaire et le développement de nouveaux médicaments.

Simulation des images de champ magnétique obtenues par microscopie à centre NV

Sommaire

A.1 Méthode générale	151
A.1.1 Discrétisation de la distribution d'aimantation	152
A.1.2 Calcul du champ de fuite	152
A.1.3 Application de la réponse du centre NV	154
A.2 Exemples illustratifs	155
A.2.1 Exemple 1 : Structure vortex dans un microplot carré	155
A.2.2 Exemple 2 : Paroi de domaine dans une couche ultramince à aimantation perpendiculaire	157
A.3 Modèles pour le calcul du champ de fuite d'une paroi de domaine	158
A.3.1 Modèles à une dimension	158
A.3.2 Modèles à deux dimensions	165

Dans cette annexe, nous décrivons d'abord la procédure générale pour simuler les images de champ magnétique obtenues avec le microscope à centre NV (§ A.1). Nous illustrerons ensuite cette méthode par deux exemples de structures magnétiques abordées dans ce manuscrit : un microplot carré présentant un état vortex, puis une paroi de domaine dans une piste à aimantation perpendiculaire (§ A.2). Enfin, nous examinerons différents modèles permettant de calculer de manière simple le champ de fuite généré par une paroi de domaine dans une couche ultramince (§ A.3).

A.1 Méthode générale

Comme illustré dans la figure A.1, la procédure que nous suivons pour simuler les images de microscopie à centre NV comprend trois étapes :

1. discrétiser la distribution d'aimantation $\mathbf{M}(x, y, z)$ de la structure magnétique ;
2. calculer le champ de fuite $\mathbf{B}(x, y)$ à une distance d , correspondant à la hauteur de vol du centre NV ;
3. appliquer la réponse du centre NV pour obtenir la simulation de la carte de déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}}(x, y)$, de la carte de champ $B_{\text{NV}}(x, y)$, ou encore de l'image iso-champ $\mathcal{D}(x, y)$.

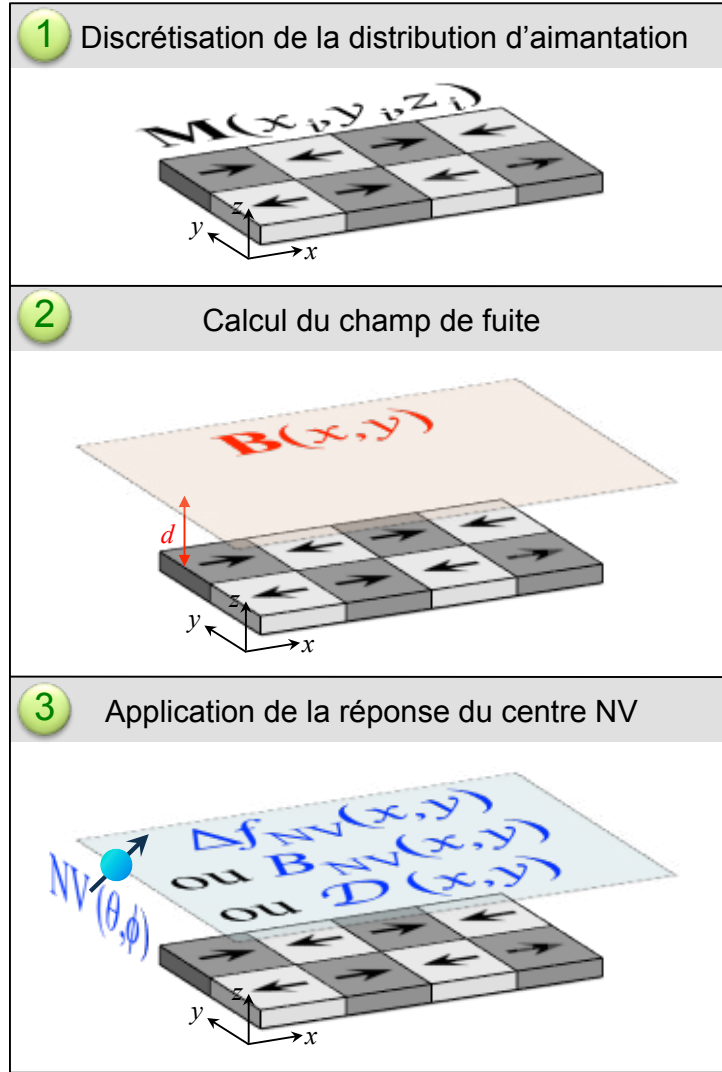


FIGURE A.1 – Diagramme illustrant les trois étapes suivies pour simuler les images de champ magnétique obtenues par microscopie à centre NV.

A.1.1 Discrétisation de la distribution d'aimantation

La première étape a pour objectif de discrétiser la distribution d'aimantation $\mathbf{M}(x, y, z)$ en un ensemble de parallélépipèdes aimantés uniformément. Autrement dit, on cherche à déterminer un ensemble de N cellules $\{i\}_{i=1..N}$, où la cellule i est un parallélépipède de dimensions $2a_i \times 2b_i \times 2c_i$ et d'aimantation \mathbf{M}_i , centré en (x_i, y_i, z_i) . Selon le degré de précision désiré, on pourra prendre un maillage fin et utiliser un logiciel dédié pour obtenir l'état d'équilibre de la structure magnétique, tel que le logiciel de calcul micro-magnétique OOMMF [110], ou bien réaliser une décomposition directement à partir d'un modèle théorique.

A.1.2 Calcul du champ de fuite

La seconde étape consiste à calculer le champ de fuite de la structure en utilisant la distribution d'aimantation discrétisée. Pour cela, on utilise les formules analytiques du champ de fuite généré par un parallélépipède uniformément aimanté.

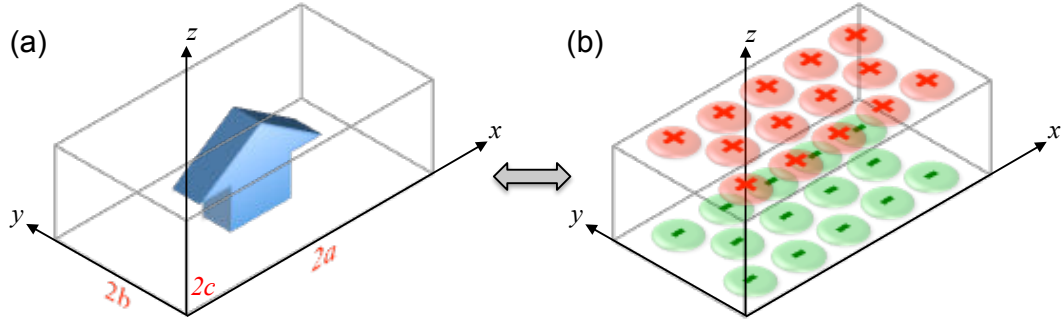


FIGURE A.2 – Un barreau aimanté uniformément (a) est équivalent à un condensateur plan (b). Les “électrodes” portent une densité surfacique de charges magnétiques $\pm\sigma_m = \pm M_s$ où M_s est l’aimantation par unité de volume du matériau ferromagnétique.

Ces formules sont obtenues comme suit. Considérons par exemple la géométrie de la figure A.2a, c’est-à-dire un parallélépipède de taille $2a \times 2b \times 2c$ possédant une aimantation uniforme orientée selon l’axe z , soit $\mathbf{M} = M_s \hat{\mathbf{z}}$ où M_s est l’aimantation à saturation du matériau. En utilisant l’artifice mathématique des charges magnétiques, on est ramené au problème d’un condensateur plan bien connu en électrostatique (figure A.2b). Les charges magnétiques couvrent les surfaces $z = \pm c$ du barreau aimanté, avec une densité surfacique $\pm\sigma_m$ où $\sigma_m = \mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{z}} = M_s$. Le potentiel scalaire magnétique est simplement l’intégrale sur les deux surfaces chargées du potentiel “coulombien” d’une simple charge, qui s’écrit, en prenant l’origine du repère au centre du parallélépipède,

$$\begin{aligned} \phi_m(x, y, z) = & \frac{1}{4\pi} \int_{-a}^{+a} dx' \int_{-b}^{+b} dy' \frac{+\sigma_m}{\sqrt{(x-x')^2 + (y-y')^2 + (z-c)^2}} \\ & + \frac{1}{4\pi} \int_{-a}^{+a} dx' \int_{-b}^{+b} dy' \frac{-\sigma_m}{\sqrt{(x-x')^2 + (y-y')^2 + (z+c)^2}}. \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

Le champ magnétique peut alors être calculé sans approximation en tout point de l’espace. À l’extérieur de l’aimant, il s’écrit $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} = -\mu_0 \nabla \phi_m$, où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide. Après intégration, on obtient l’expression des trois composantes

$$\begin{cases} B_{xx} = -\frac{\mu_0 M_s}{8\pi} \ln \left[\prod_{i=\pm 1} \prod_{j=\pm 1} \prod_{k=\pm 1} \left(\frac{(y+jb) - \sqrt{(x+ia)^2 + (y+jb)^2 + (z+kc)^2}}{(y+jb) + \sqrt{(x+ia)^2 + (y+jb)^2 + (z+kc)^2}} \right)^{ijk} \right] \\ B_{yy} = -\frac{\mu_0 M_s}{8\pi} \ln \left[\prod_{i=\pm 1} \prod_{j=\pm 1} \prod_{k=\pm 1} \left(\frac{(x+ia) - \sqrt{(x+ia)^2 + (y+jb)^2 + (z+kc)^2}}{(x+ia) + \sqrt{(x+ia)^2 + (y+jb)^2 + (z+kc)^2}} \right)^{ijk} \right] \\ B_{zz} = -\frac{\mu_0 M_s}{4\pi} \sum_{i=\pm 1} \sum_{j=\pm 1} \sum_{k=\pm 1} ijk \tan^{-1} \frac{(x+ia)(y+jb)}{(z+kc) \sqrt{(x+ia)^2 + (y+jb)^2 + (z+kc)^2}} \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

Des formules analogues peuvent être obtenues pour un parallélépipède aimanté selon x (composantes B_{xx} , B_{xy} et B_{xz}) ou y (composantes B_{yx} , B_{yy} et B_{yz}), et donc, par superposition, pour toute direction d’aimantation \mathbf{M} . Le champ de fuite de la structure magnétique est finalement obtenu en sommant les contributions de toutes les cellules de la structure. En général, nous sommes intéressés par le champ à une distance d donnée de

la structure, qui correspond à la hauteur de vol du centre NV. La somme est donc évaluée pour une seule altitude z , par exemple $z = c + d$, si d est défini comme la distance entre le centre NV et la face supérieure du parallélépipède considéré.

La sommation sur toutes les cellules de la structure est réalisée avec le logiciel MATLAB. Lorsque le maillage de la structure est régulier, on peut remarquer qu'on a affaire à un problème de convolution entre la distribution d'aimantation et le champ de fuite d'une cellule élémentaire de cette distribution – "la fonction de transfert". Il est alors avantageux, en termes de temps de calcul, d'effectuer le produit de convolution dans l'espace de Fourier.

A.1.3 Application de la réponse du centre NV

Une fois que le champ de fuite total $\mathbf{B}(x, y)$ est calculé, il ne reste plus qu'à appliquer la réponse du centre NV pour obtenir des images comparables à celles obtenues expérimentalement. Pour des champs suffisamment faibles ($\lesssim 5$ mT, cf. § 1.3.2), les fréquences de résonance de spin du centre NV, f_{\pm} , sont reliées à la projection B_{NV} du champ magnétique local sur l'axe NV selon

$$f_{\pm}(B_{\text{NV}}) \approx D \pm \sqrt{E^2 + \left(\frac{g_{\text{NV}}\mu_B}{h} B_{\text{NV}}\right)^2}, \quad (\text{A.3})$$

où D et E sont les paramètres de clivage du centre NV (cf. § 1.3.1).

Expérimentalement, la spectroscopie ESR nous permet de mesurer l'une des fréquences f_+ ou f_- , ou bien de les encoder partiellement dans l'intensité de fluorescence avec le mode d'imagerie iso-champ. Cependant, il est commode de convertir ces fréquences en champ magnétique en utilisant la relation inverse de l'équation (A.3), soit

$$B_{\text{NV}} \approx \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \sqrt{(f_{\pm} - D)^2 - E^2}. \quad (\text{A.4})$$

Ainsi, les images montrées dans ce manuscrit sont généralement des cartes de champ B_{NV} , ou bien des images iso-champ dont les contours sont exprimées en termes de B_{NV} .

Une carte de B_{NV} est simulée en calculant simplement la projection du champ calculé $\mathbf{B}(x, y)$ sur l'axe NV, soit

$$B_{\text{NV}} = |\mathbf{B} \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| \quad (\text{A.5})$$

où \mathbf{u}_{NV} est le vecteur directeur unitaire caractérisant l'axe NV. Celui-ci est défini par les angles sphériques (θ, ϕ) dans le référentiel xyz du laboratoire, qui sont mesurés comme expliqué au chapitre 2 (cf. § 2.2.3).

Les images iso-champ différentielles sont enregistrées en appliquant successivement deux fréquences rf $f_{\text{rf},1}$ et $f_{\text{rf},2}$, révélant ainsi les contours $B_{\text{NV}} = B_{\text{NV},1}$ et $B_{\text{NV}} = B_{\text{NV},2}$ avec

$$B_{\text{NV},i} \approx \frac{h}{g_{\text{NV}}\mu_B} \sqrt{(f_{\text{rf},i} - D)^2 - E^2}. \quad (\text{A.6})$$

Pour obtenir la simulation d'une telle image iso-champ, on applique à la carte de champ B_{NV} la fonction

$$\mathcal{D}(f_{\text{rf},1}, f_{\text{rf},2}, B_{\text{NV}}) = \mathcal{S}(f_{\text{rf},2}, B_{\text{NV}}) - \mathcal{S}(f_{\text{rf},1}, B_{\text{NV}}), \quad (\text{A.7})$$

où $\mathcal{S}(f_{\text{rf}}, B_{\text{NV}})$ est le spectre ESR pour un champ B_{NV} donné. Celui-ci est exprimé sous la forme d'une somme de deux fonctions gaussiennes $\mathcal{G}(x) = e^{-x^2}$, soit

$$\mathcal{S}(f_{\text{rf}}, B_{\text{NV}}) = \mathcal{R} \left(1 - \mathcal{C} \left[\mathcal{G} \left(\frac{f_{\text{rf}} - f_+(B_{\text{NV}})}{\Delta f_r / 2 \sqrt{\ln 2}} \right) + \mathcal{G} \left(\frac{f_{\text{rf}} - f_-(B_{\text{NV}})}{\Delta f_r / 2 \sqrt{\ln 2}} \right) \right] \right). \quad (\text{A.8})$$

Dans cette expression, \mathcal{R} est le taux de fluorescence détecté hors résonance, \mathcal{C} est le contraste des raies ESR, et Δf_r est la largeur à mi-hauteur des raies. Ces paramètres, ainsi que les paramètres D et E qui interviennent dans la relation (A.3), sont déterminés expérimentalement en enregistrant au préalable un spectre ESR en champ magnétique nul.

Dans la section 3.3 du chapitre 3, la fréquence de résonance f_+ mesurée n'est pas convertie en champ magnétique B_{NV} afin d'éviter de recourir à l'équation approximative (A.4), qui peut introduire une erreur de quelques pourcents en présence d'un champ transverse à l'axe NV (cf. § 1.3.2). Dans ce cas, les images expérimentales sont simplement exprimées en termes de déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}} = f_+ - D$. Pour simuler ces images, on diagonalise, en chaque point (x, y) , le Hamiltonien du centre NV

$$\mathcal{H}(x, y) = hDS_Z^2 + hE(S_X^2 - S_Y^2) + g_{\text{NV}}\mu_B \mathbf{B}(x, y) \cdot \mathbf{S} , \quad (\text{A.9})$$

où le référentiel XYZ est défini par l'orientation du cristal de diamant, l'axe Z étant parallèle à l'axe NV¹. À partir des énergies propres de \mathcal{H} , on déduit la fréquence de transition de spin f_+ , et donc la carte du déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}}(x, y) = f_+ - D$, qui peut finalement être comparée à l'image expérimentale. Comme précédemment, les paramètres requis pour la simulation, à savoir D , E ainsi que les angles (θ, ϕ) qui caractérisent l'axe NV, sont mesurés au préalable.

A.2 Exemples illustratifs

Nous allons montrer ici brièvement comment s'applique concrètement cette méthode de simulation, en prenant deux exemples tirés des chapitres 2 et 3. La première structure considérée est un microplot carré de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, qui requiert un maillage très fin et l'utilisation d'un logiciel de calcul micromagnétique. À l'inverse, la deuxième structure abordée, une paroi de domaine dans une piste à aimantation perpendiculaire, est relativement bien décrite par un modèle très simple comportant seulement deux cellules.

A.2.1 Exemple 1 : Structure vortex dans un microplot carré

Considérons un microplot carré de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, de taille $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m} \times 50 \text{ nm}$, comme ceux étudiés expérimentalement au chapitre 2 (cf. § 2.3.4). L'état d'équilibre d'une telle structure est l'état vortex. Pour décrire correctement le cœur de vortex, la structure est discrétisée en cellules de taille $2 \times 2 \times 2 \text{ (nm)}^3$, ce qui est plus petit que la longueur d'échange du matériau, $\Lambda \approx 6 \text{ nm}$. Le logiciel OOMMF est alors utilisé pour déterminer la distribution d'aimantation qui minimise l'énergie micromagnétique totale. Les paramètres du calcul sont l'aimantation à saturation $M_s = 8 \cdot 10^5 \text{ A/m}$ et la constante d'échange $A = 13 \text{ pJ/m}$.

La figure A.3 montre les différentes étapes du calcul des images de microscopie à centre NV. On prendra ici comme exemple les conditions d'acquisition de la figure 2.15 du chapitre 2, c'est-à-dire une hauteur de vol $d \approx 100 \text{ nm}$, un axe NV orienté selon $(\theta = 37^\circ, \phi = -45^\circ)$, et des images iso-champ de contours $B_{\text{NV},1} = 0$ et $B_{\text{NV},2} = 0.8 \text{ mT}$.

1. Le choix des axes X et Y , normalement imposé par la direction de la contrainte mécanique transverse à l'axe NV, est ici choisi arbitrairement car il n'affecte que le régime des très faibles champs, tels que $B_{\text{NV}} \lesssim \frac{hE}{g_{\text{NV}}\mu_B}$ (cf. § 1.3.1).

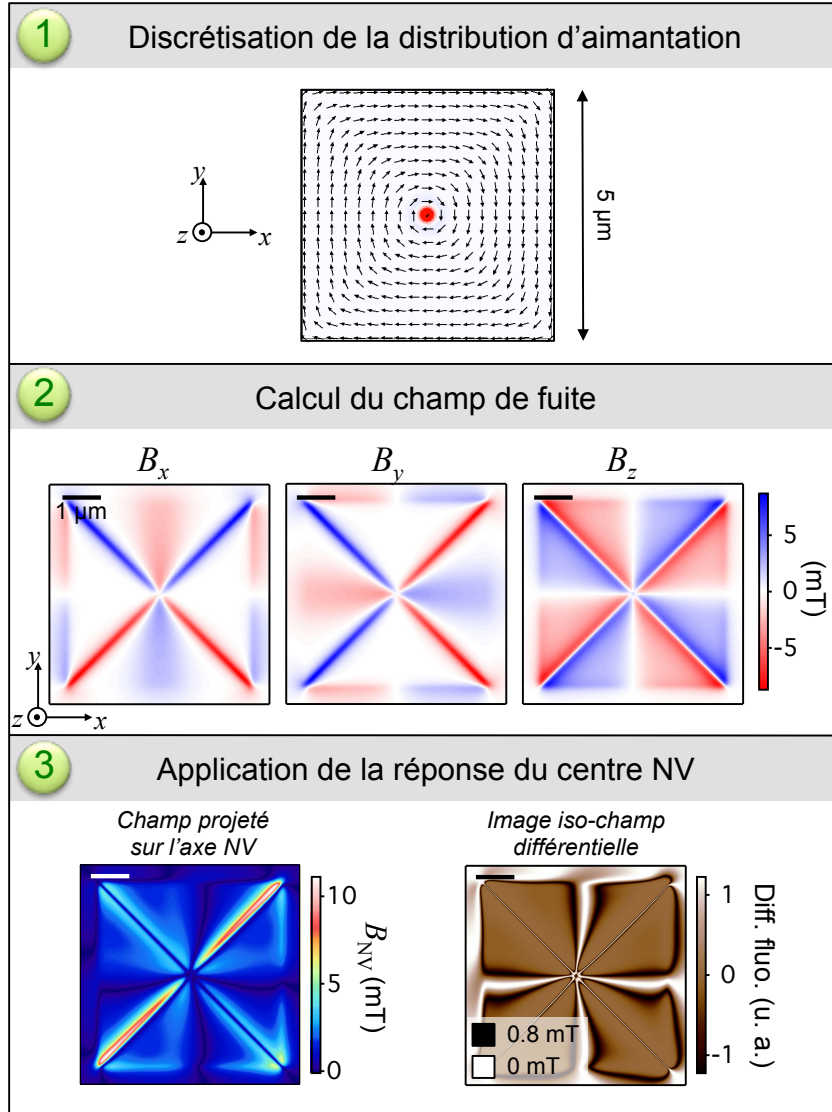


FIGURE A.3 – Exemple d'un microplot carré dans l'état vortex. (1) La structure est maillée de manière très fine (pas de 2 nm dans les trois directions de l'espace), et le logiciel OOMMF est utilisé pour obtenir la distribution d'aimantation d'équilibre. L'image représente la distribution d'aimantation dans le plan xy au milieu de la structure, les flèches indiquant la composante planaire et le code couleur la composante perpendiculaire (rouge signifie que \mathbf{M} pointe vers le haut). (2) La distribution du champ de fuite est calculée à une distance $d = 100$ nm de la surface supérieure du plot. (3) En supposant un axe NV orienté selon $(\theta = 37^\circ, \phi = -45^\circ)$ comme dans la figure 2.15, on calcule le champ projeté B_{NV} puis l'image iso-champ, qui correspond ici aux contours $B_{NV,1} = 0$ et $B_{NV,2} = 0.8$ mT.

Une fois la distribution d'aimantation obtenue, le champ de fuite est calculé à la distance $d = 100$ nm, duquel on déduit la carte de B_{NV} puis l'image iso-champ, qui montre un très bon accord avec l'expérience (cf. figure 2.15).

A.2.2 Exemple 2 : Paroi de domaine dans une couche ultramince à aimantation perpendiculaire

On considère maintenant une paroi de domaine dans une piste magnétique à anisotropie perpendiculaire. On prendra comme exemple les conditions d'acquisition de la figure 3.16 du chapitre 3, c'est-à-dire une hauteur de vol $d \approx 110$ nm, un axe NV orienté

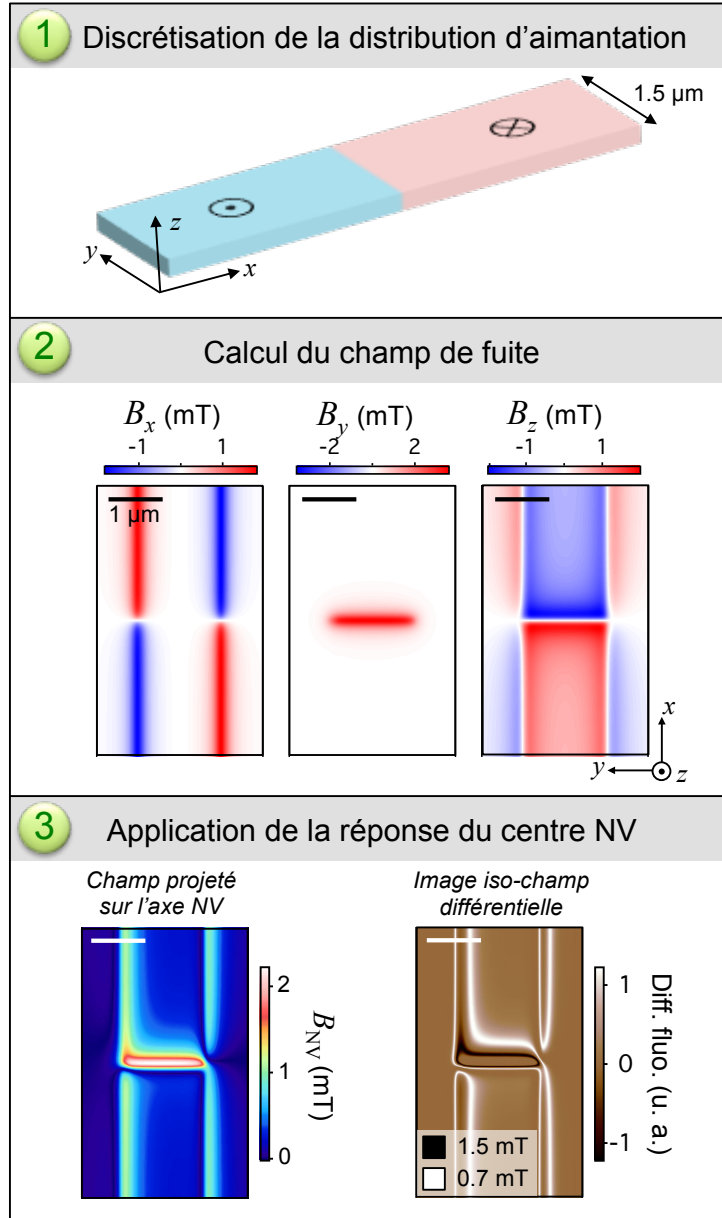


FIGURE A.4 – Exemple d'une paroi de domaine dans une piste ultramince à aimantation perpendiculaire. (1) La structure est ici modélisée par un ensemble de deux parallélépipèdes aimantés uniformément, ce qui implique que la structure interne de la paroi est ignorée. (2) La distribution du champ de fuite est calculé à une distance $d = 110$ nm de la couche magnétique. (3) En supposant un axe NV orienté selon $(\theta = 122^\circ, \phi = 45^\circ)$ comme dans la figure 2.15, on calcule le champ projeté B_{NV} puis l'image iso-champ, qui correspond ici aux contours $B_{NV,1} = 0.7$ mT et $B_{NV,2} = 1.5$ mT.

selon ($\theta = 122^\circ, \phi = 45^\circ$), et des images iso-champ de contours $B_{\text{NV},1} = 0.7$ mT et $B_{\text{NV},2} = 1.5$ mT. La piste magnétique a une largeur de $1.5 \mu\text{m}$ et est basée sur l'empilement Ta|CoFeB(1 nm)|MgO. La structure à simuler a donc une épaisseur de 1 nm.

Bien que la paroi de domaine possède une structure interne qui nécessite un maillage fin, le champ de fuite peut être calculé en première approximation en négligeant cette structure interne. C'est ce que nous illustrons dans la figure A.4, où la structure est décomposée en seulement deux parallélépipèdes représentant les deux domaines, l'un aimanté vers le haut, l'autre vers le bas, séparés par une paroi abrupte. Le seul paramètre magnétique à définir est alors l'aimantation à saturation $M_s = 10^6$ A/m.

Avec ce modèle à deux domaines, le champ de fuite est simplement la somme du champ de chaque domaine, lequel est donné par les équations (A.2). Comme précédemment, à partir du champ de fuite $\mathbf{B}(x, y)$, on peut calculer le champ projeté sur l'axe NV, puis l'image iso-champ.

Dans la section suivante, nous allons examiner l'erreur introduite par cette approximation de la paroi abrupte en comparaison à un calcul micromagnétique complet avec un maillage fin. Nous discuterons également de plusieurs autres modèles approximatifs qui permettent un calcul simple du champ de fuite d'une paroi de domaine.

A.3 Modèles pour le calcul du champ de fuite d'une paroi de domaine

Nous allons examiner divers modèles et approximations qui permettent de calculer simplement le champ de fuite d'une paroi de domaine et d'en obtenir des formules analytiques. Nous procéderons par ordre de complexité croissante, en commençant par une description à une dimension (1D), avant d'examiner des modèles à deux dimensions (2D).

A.3.1 Modèles à une dimension

Soit une couche magnétique ultramince à anisotropie perpendiculaire. La couche est parallèle au plan xy , et z est l'axe d'aimantation facile. L'aimantation \mathbf{M} est supposée uniforme à travers toute l'épaisseur t de la couche car $t \ll \Lambda$, où Λ est la longueur d'échange. Il est important de rappeler, tout d'abord, qu'une couche qui s'étend à l'infini dans le plan xy et aimantée uniformément – vers les z positifs ou négatifs – ne produit aucun champ magnétique à l'extérieur, de la même manière qu'il n'y a pas de champ électrique à l'extérieur d'un condensateur électrique planaire infini. Il n'y a donc de champ de fuite non nul qu'en présence d'une variation spatiale – dans le plan xy – de l'aimantation. Une telle variation peut se produire soit au niveau des bords de la couche, soit au niveau d'une paroi de domaine.

Nous allons considérer d'abord un modèle 1D, où la structure est supposée infinie selon y et l'aimantation ne varie que selon x . Deux situations sont d'un intérêt particulier : le cas d'un bord abrupt de la couche magnétique (figure A.5a), et celui d'une paroi de domaine (figure A.5b). Si la paroi est abrupte, c'est-à-dire que sa structure interne est négligée, ces deux situations sont équivalentes en ce qui concerne le champ magnétique de fuite. En effet, elles correspondent toutes deux à une variation abrupte de l'aimantation de la

forme

$$M_z(x) = \begin{cases} +M_s & \text{si } x < 0 \\ +M_s - \Delta M_z & \text{si } x > 0 \end{cases}, \quad (\text{A.10})$$

avec $\Delta M_z = M_s$ pour un bord de la couche et $\Delta M_z = 2M_s$ pour une paroi de domaine (figure A.5c). Le champ de fuite d'une paroi abrupte est donc simplement deux fois celui d'un bord.

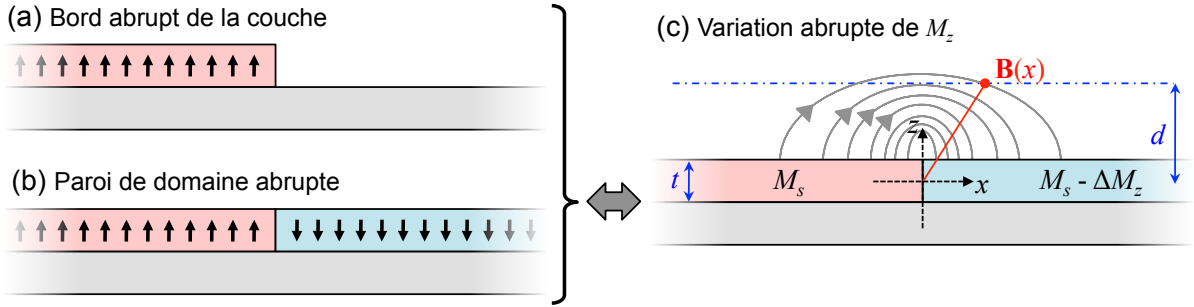


FIGURE A.5 – (a,b) Géométries considérées pour le calcul du champ de fuite au-dessus d'une couche ultramince à aimantation perpendiculaire, d'épaisseur t et d'aimantation à saturation M_s : (a) un bord de la couche uniformément aimantée et (b) une paroi de domaine abrupte. (c) Ces deux situations sont équivalentes, en ce qui concerne le champ de fuite (symbolisé par les lignes grises), à une variation abrupte de l'aimantation perpendiculaire M_z . La variation est deux fois plus petite pour un bord ($\Delta M_z = M_s$) que pour une paroi ($\Delta M_z = 2M_s$).

Bord abrupt de la couche magnétique

Le champ de fuite d'un bord abrupt, \mathbf{B}^{bord} , peut être calculé de manière analogue au cas d'un parallélépipède uniformément aimanté traité plus haut (cf. § A.1.2), en utilisant l'artifice des charges magnétiques. Dans le cas présent, on a deux plans semi-infinis ($x < 0$) portant des charges positives (en $z = +t/2$) et négatives (en $z = -t/2$). Du fait de l'invariance par translation selon y , la composante B_y du champ est toujours nulle. Les deux autres composantes du champ s'écrivent, à une distance d de la couche,

$$\begin{cases} B_x^{\text{bord}}(x) = \frac{\mu_0 M_s}{4\pi} \ln \left[\frac{x^2 + (d + \frac{t}{2})^2}{x^2 + (d - \frac{t}{2})^2} \right] \\ B_y^{\text{bord}}(x) = 0 \\ B_z^{\text{bord}}(x) = \frac{\mu_0 M_s}{2\pi} \left[\tan^{-1} \left(\frac{x}{d + \frac{t}{2}} \right) - \tan^{-1} \left(\frac{x}{d - \frac{t}{2}} \right) \right] \end{cases}. \quad (\text{A.11})$$

La distance d est liée à la hauteur de vol du centre NV par rapport à la surface de l'échantillon, qui est typiquement de l'ordre de 100 nm. Pour les films ultraminces considérés ici, on a $t \lesssim 1$ nm, d'où $t \ll d$. En utilisant cette limite, dite des "films minces", on obtient

les expressions approchées

$$\begin{cases} B_x^{\text{bord}}(x) \approx \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{d}{x^2 + d^2} \\ B_y^{\text{bord}}(x) = 0 \\ B_z^{\text{bord}}(x) \approx -\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{x}{x^2 + d^2} \end{cases} \quad (\text{A.12})$$

La figure A.6 montre les composantes B_x^{bord} et B_z^{bord} calculées avec ces formules à une distance $d = 100$ nm. Un agrandissement près du maximum en $x = 0$ permet de voir une légère différence entre les formules exactes (A.11) et approchées (A.12). Précisément, l'erreur relative est de 10^{-5} dans cet exemple, et elle augmente à seulement 10^{-3} pour $d = 10$ nm. Pour toutes les expériences réalisées dans ce manuscrit, l'approximation des films minces est donc largement justifiée.

Par ailleurs, les formules approchées (A.12) indiquent que la composante planaire $B_x^{\text{bord}}(x)$ est une fonction lorentzienne de largeur à mi-hauteur $2d$ et de hauteur $\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi d}$, tandis que la composante perpendiculaire $B_z^{\text{bord}}(x)$ est la dérivée d'une fonction lorentzienne, gouvernée par les mêmes paramètres. Cela suggère que la mesure quantitative de la distribution du champ de fuite au-dessus d'un bord peut permettre, en principe, de déterminer la distance d ainsi que le produit $I_s = M_s t$, qui sont les deux paramètres indépendants qui interviennent dans ces formules. Cette idée est mise à profit expérimentalement au chapitre 3 (cf. § 3.3.2).

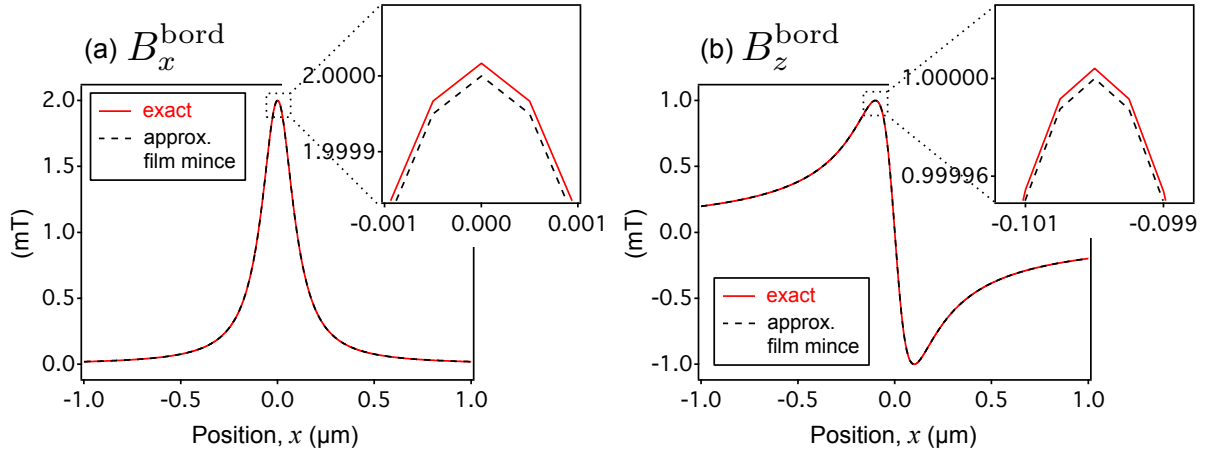


FIGURE A.6 – Profil du champ de fuite au-dessus d'un bord abrupt d'une couche d'aimantation uniforme $M_z = +M_s$. Les graphes (a) et (b) montrent les composantes planaire B_x^{bord} et perpendiculaire B_z^{bord} , respectivement. Le calcul est effectué avec les formules exactes (lignes rouges continues) ainsi qu'avec l'approximation des films minces (lignes noires pointillées). Les paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $d = 100$ nm, $M_s = 10^6$ A/m.

Structure interne d'une paroi de domaine

Comme mentionné plus haut, le champ de fuite d'une paroi de domaine abrupte est égal à deux fois celui d'un bord abrupt. Cependant, l'étude de la structure interne de la paroi et donc de sa nature – Bloch ou Néel – nécessite un modèle plus fin. Pour cela,

il est commode de séparer d'abord le champ de fuite d'une paroi en deux contributions (figure A.7) :

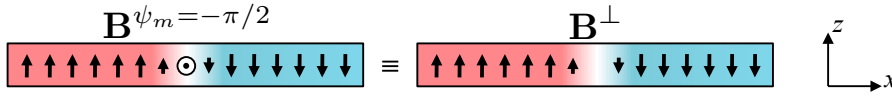
- l'aimantation perpendiculaire m_z produit un champ de fuite \mathbf{B}^\perp ;
- l'aimantation planaire $\mathbf{m}_\parallel = (m_x, m_y)$ produit un champ de fuite \mathbf{B}^\parallel pondéré par un facteur $\cos \psi_m$, où $\psi_m = \tan^{-1}(m_y/m_x)$ est l'angle que forme l'aimantation planaire avec l'axe x .

Autrement dit, le champ net pour un angle ψ_m donné s'écrit

$$\mathbf{B}^{\psi_m} = \mathbf{B}^\perp + \cos \psi_m \mathbf{B}^\parallel, \quad (\text{A.13})$$

avec $\psi_m = \pm\pi/2$ pour une paroi de Bloch et $\psi_m = 0$ ou π pour une paroi de Néel. Nous allons maintenant examiner différents modèles pour calculer ces deux contributions.

(a) Paroi de Bloch



(b) Paroi de Néel

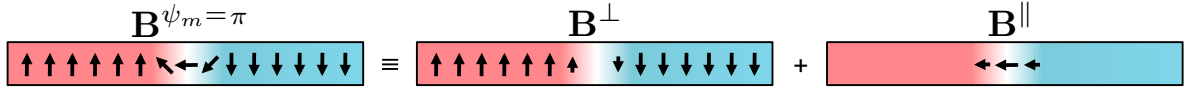


FIGURE A.7 – Le champ de fuite d'une paroi \mathbf{B}^{ψ_m} peut être décomposé en deux contributions \mathbf{B}^\perp et $\cos \psi_m \mathbf{B}^\parallel$, dues aux composantes perpendiculaire et planaire de l'aimantation, respectivement. (a) Pour une paroi de Bloch, la deuxième contribution est nulle car $\cos \psi_m = 0$. (b) Pour une paroi de Néel, la contribution planaire \mathbf{B}^\parallel s'ajoute à la contribution principale.

Paroi de domaine : contribution perpendiculaire \mathbf{B}^\perp

La théorie micromagnétique des parois de domaine dans les couches à anisotropie perpendiculaire indique que, en l'absence d'interaction Dzyaloshinskii-Moriya, le profil de l'aimantation pour une paroi $\uparrow\downarrow$ centrée en $x = 0$ prend la forme (cf. § 3.2.1)

$$m_z = -\tanh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right), \quad (\text{A.14})$$

où Δ_p est la paramètre qui caractérise la largeur de la paroi. Bien que le champ de fuite généré par ce profil d'aimantation ne puisse être calculé de manière analytique, il est possible d'en obtenir des formules approchées.

Le modèle le plus simple est celui d'une paroi abrupte, ce qui revient à prendre la limite $\frac{\Delta_p}{d} \rightarrow 0$. Comme discuté précédemment, le champ de fuite est dans ce cas simplement le double du champ d'un bord abrupt, soit

$$\mathbf{B}^\perp \approx 2\mathbf{B}^{\text{bord}}. \quad (\text{A.15})$$

La figure A.8 montre que cette approximation est relativement bonne pour une paroi de largeur $\Delta_p = 5$ nm, avec une hauteur de vol $d = 100$ nm. L'erreur relative par rapport

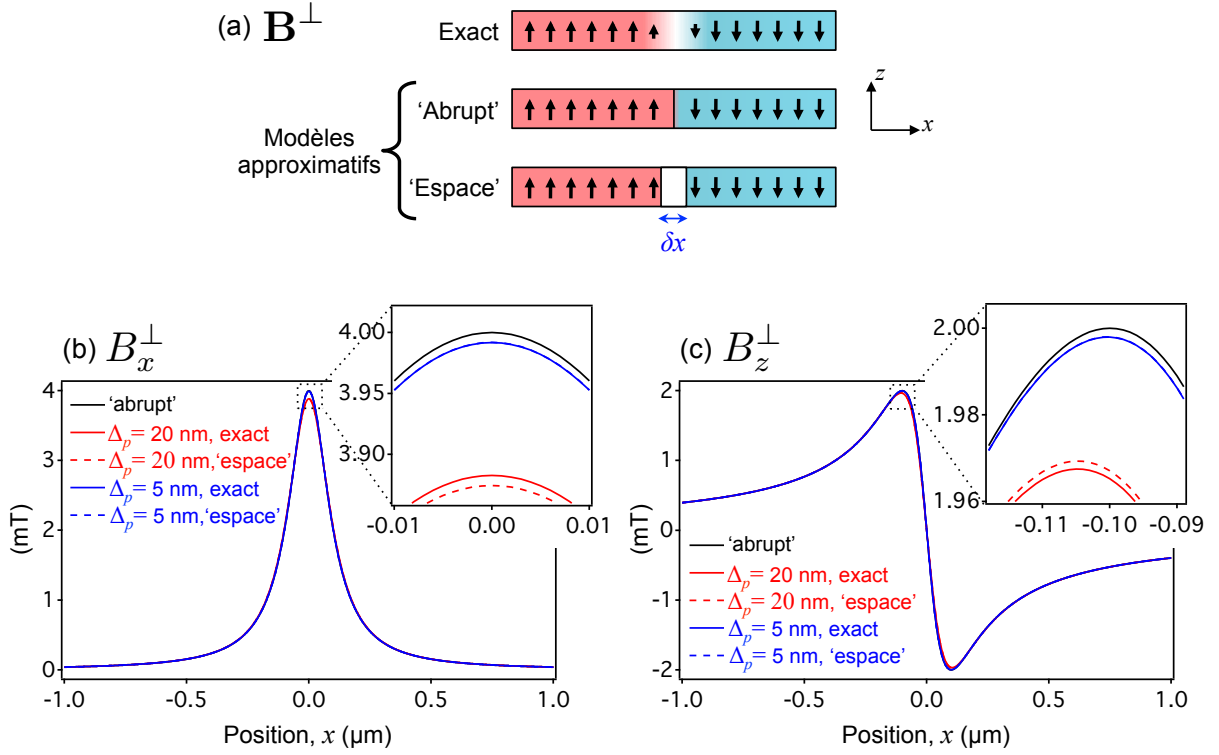


FIGURE A.8 – (a) Modèles considérés pour le calcul de la contribution \mathbf{B}^\perp du champ de fuite au-dessus d’une paroi de domaine. (b,c) Composantes planaire $B_x^\perp(x)$ (b) et perpendiculaire $B_z^\perp(x)$ du profil de champ (c). Le calcul est effectué avec le profil exact de m_z (lignes rouges et bleues continues), avec le modèle ‘espace’ (lignes rouges et bleues pointillées), et en considérant une paroi abrupte (lignes noires). La largeur de paroi est prise égale à $\Delta_p = 20$ nm (courbes rouges) et $\Delta_p = 5$ nm (courbes bleues). Dans le modèle ‘espace’, la largeur du domaine non aimanté est prise égale $\delta x = 1.8\Delta_p$ pour obtenir un bon accord avec le calcul exact. Les autres paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $d = 100$ nm, $M_s = 10^6$ A/m.

au calcul exact² est de 0.2% au niveau de maximum de $B_x^\perp(x)$ et 0.1% au niveau de maximum de $B_z^\perp(x)$. En revanche, cette erreur augmente à 3% et 1.5%, respectivement, pour une paroi de largeur $\Delta_p = 20$ nm.

Pour mieux prendre en compte la largeur finie de la paroi, on peut utiliser le modèle schématisé dans la figure A.8a, désigné comme modèle ‘espace’. Dans ce modèle, un espace non aimanté d’une certaine largeur δx est ajouté entre les deux domaines \uparrow et \downarrow . Le champ de fuite est alors la somme du champ de deux bords situés en $x = \pm\delta x/2$, soit

$$\mathbf{B}^\perp(x) \approx \mathbf{B}^{\text{bord}}\left(x - \frac{\delta x}{2}\right) + \mathbf{B}^{\text{bord}}\left(x + \frac{\delta x}{2}\right). \quad (\text{A.16})$$

Les figures A.8b et A.8c montrent que cette approximation donne un très bon accord avec le calcul exact (erreur relative $\approx 0.2\%$ pour $\Delta_p = 20$ nm) si l’on prend un espacement *ad hoc* de $\delta x \approx 1.8\Delta_p$.

2. Le calcul “exact” est réalisé comme expliqué dans la section A.1 : on discrétise le profil d’aimantation $m_z(x)$ en segments beaucoup plus petit que Δ_p , puis on somme les contributions de chaque segment pour obtenir le champ de fuite total.

Ce modèle à deux domaines séparés par un espace constitue donc une très bonne approximation pour des parois de largeur $\Delta_p \lesssim 20$ nm. Pour des parois plus larges, la hauteur de vol d devient de l'ordre de grandeur de Δ_p , si bien que le profil exact de m_z ne peut plus être approximé.

Paroi de domaine : contribution planaire \mathbf{B}^{\parallel}

L'amplitude de l'aimantation planaire a un profil de la forme

$$\begin{aligned} m_{\parallel}(x) &= \sqrt{1 - m_z^2} \\ &= \frac{1}{\cosh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right)}. \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Nous allons considérer dans cette section le cas d'une paroi de Néel de chiralité gauche ($\psi_m = \pi$), ce qui implique que $m_x(x) = -m_{\parallel}(x)$ et $m_y(x) = 0$. L'amplitude du moment magnétique net selon x vaut alors

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} dx |M_x(x)| &= M_s \int_{-\infty}^{+\infty} dx |m_x(x)| \\ &= \pi \Delta_p M_s. \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Ce résultat suggère au moins deux manières de calculer simplement le champ de fuite résultant \mathbf{B}^{\parallel} (figure A.9a). La première possibilité est de modéliser le profil $m_x(x)$ en un domaine d'aimantation planaire uniforme, de largeur $\pi \Delta_p$ et d'amplitude d'aimantation M_s . Le champ de fuite est alors celui d'un parallélépipède aimanté uniformément, et des expressions analogues aux équations A.2 peuvent donc être employées en prenant les limites adéquates (largeur infinie et approximation des films minces).

Une autre approche est de localiser le moment magnétique en un seul point dans le plan xz , au centre de la paroi ($x = 0, z = 0$). Le champ de fuite est alors celui d'un dipôle magnétique

$$d\mathbf{m} = \pi M_s t \Delta_p dy \hat{\mathbf{x}} \quad (\text{A.19})$$

intégré sur la direction transverse y . Autrement dit, on a

$$\mathbf{B}^{\parallel}(x, z) = \int_{y=-\infty}^{y=+\infty} d\mathbf{B}_{\text{dip}}(x, y, z), \quad (\text{A.20})$$

où $d\mathbf{B}_{\text{dip}}(\mathbf{r})$ est le champ généré par le dipôle $d\mathbf{m}$, qui prend la forme usuelle

$$d\mathbf{B}_{\text{dip}}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} [d\mathbf{m} - 3(d\mathbf{m} \cdot \hat{\mathbf{r}}) \hat{\mathbf{r}}] \quad (\text{A.21})$$

avec $r = \|\mathbf{r}\|$ et $\hat{\mathbf{r}} = \mathbf{r}/r$. Après intégration, on obtient les composantes à une distance $z = d$

$$\begin{cases} B_x^{\parallel}(x) \approx \frac{1}{2} \mu_0 M_s t \Delta_p \frac{x^2 - d^2}{(x^2 + d^2)^2} \\ B_y^{\parallel}(x) = 0 \\ B_z^{\parallel}(x) \approx \mu_0 M_s t \Delta_p \frac{xd}{(x^2 + d^2)^2} \end{cases}. \quad (\text{A.22})$$

Les figures A.9b et A.9c montrent un accord correct entre les trois méthodes de calcul (calcul exact, modèle du ‘domaine’ et modèle du ‘dipôle’), le domaine étant une approximation légèrement meilleure que le dipôle. Comme attendu, l’accord est moins bon pour une paroi plus large (comparer les cas $\Delta_p = 20$ nm et $\Delta_p = 5$ nm), alors qu’à l’inverse les trois calculs doivent converger dans la limite $\frac{\Delta_p}{d} \rightarrow 0$.

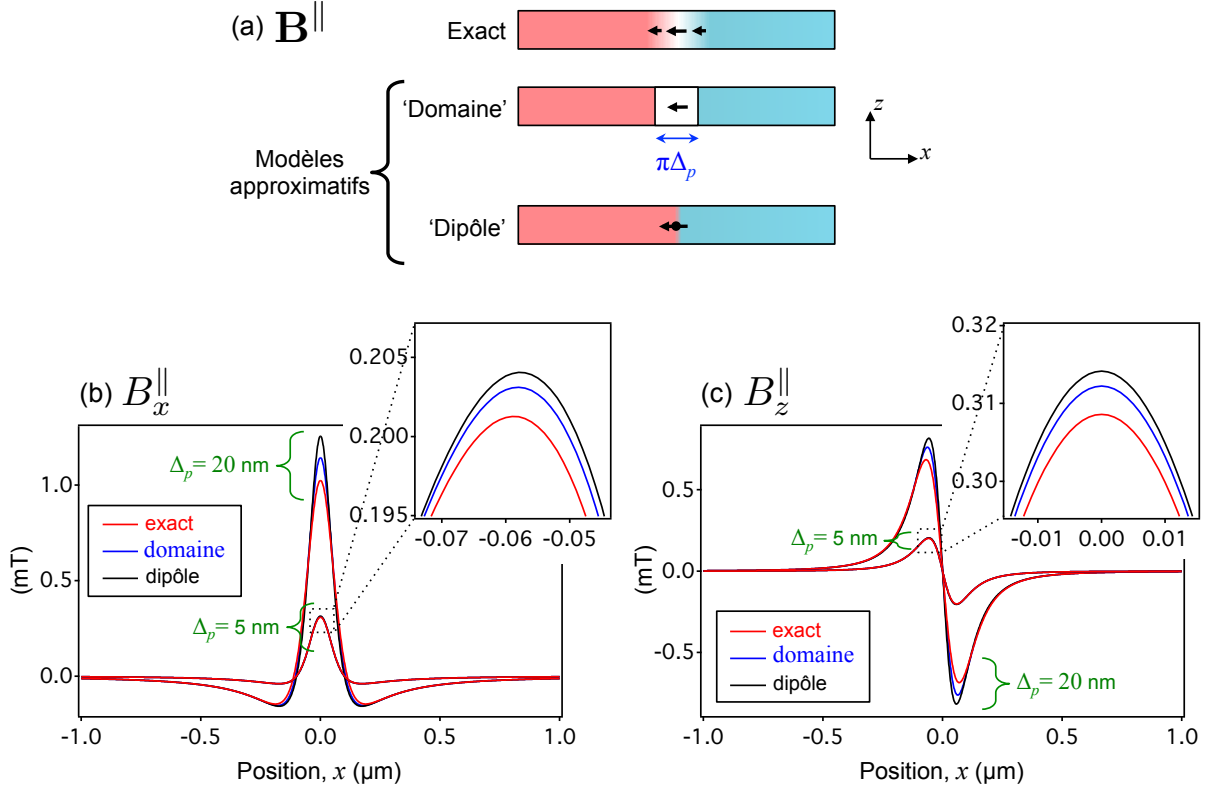


FIGURE A.9 – (a) Modèles considérés pour le calcul de la contribution $\mathbf{B}^||$ du champ de fuite au-dessus d’une paroi de domaine de type Néel gauche. (b,c) Composantes planaire $B_x^||(x)$ (b) et perpendiculaire $B_z^||(x)$ du profil de champ (c). Le calcul est effectué avec le profil exact de m_x (courbes rouges), avec le modèle ‘domaine’ (courbes bleues), et avec le modèle ‘dipôle’ (courbes noires). Deux largeurs de paroi sont considérées : $\Delta_p = 20$ nm et $\Delta_p = 5$ nm. Les autres paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $d = 100$ nm, $M_s = 10^6$ A/m.

En résumé, nous avons examiné différents modèles pour exprimer simplement le champ de fuite d’une paroi de domaine. Le modèle le plus simple consiste à considérer une variation abrupte de m_z , et de prendre en compte la structure interne de la paroi en ajoutant un dipôle magnétique planaire. C’est ce modèle que nous avons utilisé au chapitre 3 pour expliquer la méthode de détermination de la nature d’une paroi (cf. § 3.3.1), ainsi que dans l’annexe B pour calculer les incertitudes de cette méthode. Cependant, bien que cette approche fournisse des prédictions correctes à l’ordre 0 en $\frac{\Delta_p}{d}$, un calcul exact est préférable lorsqu’une précision maximale est requise, ce qui est le cas lorsqu’on cherche à déterminer la nature d’une paroi (cf. § 3.3.3 et § 3.3.4).

A.3.2 Modèles à deux dimensions

Dans les expériences rapportées dans ce manuscrit, les parois de domaine sont situées non pas dans une couche étendue mais dans une piste de largeur $w \sim 1 \mu\text{m}$. Les simulations doivent donc prendre en compte la nature 2D de la structure. Par rapport au cas 1D, les principales différences sont d'une part la présence d'un champ de fuite généré par les bords de la piste, qui s'ajoute à celui de la paroi (cf. figure A.4), et d'autre part que l'aimantation planaire m_y de la paroi de Bloch ajoute maintenant une petite contribution au champ de fuite de la paroi (figure A.10a).

Pour avoir des simulations aussi fidèles à l'expérience que possible, on utilise le logiciel OOMMF pour calculer la distribution d'aimantation à l'équilibre. Les paramètres micromagnétiques à définir sont l'aimantation à saturation M_s , la constante d'anisotropie K_{mc} et le paramètre d'échange A . Ces paramètres fixent notamment la largeur de paroi $\Delta_p = \sqrt{A/K_{\text{eff}}}$, avec $K_{\text{eff}} = K_{\text{mc}} - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$.

Comme la paroi de Bloch est moins coûteuse en énergie qu'une paroi de Néel (cf. § 3.2.1), le calcul de l'état d'équilibre converge naturellement vers une paroi de type Bloch, et ce quelque soit l'état initial. Le choix de l'état initial permet uniquement de sélectionner une chiralité plutôt qu'une autre. Pour simuler une paroi de Néel, il faut ajouter un mécanisme stabilisateur. Pour cela, un terme énergétique a été ajouté au code OOMMF par Stanislas Rohart, qui prend la forme d'une interaction Dzyaloshinskii-Moriya interfaciale [160]. Cette interaction DM permet non seulement de stabiliser les parois de Néel dans les simulations, mais c'est aussi le mécanisme physique qui est probablement à l'œuvre dans les structures réelles.

La valeur de la constante DM est fixée à $|D_{\text{DM}}| = 0.5 \text{ mJ/m}^2$, ce qui est juste au-dessus du seuil pour stabiliser complètement une paroi de Néel ($D_{c,1} \sim 0.2 \text{ mJ/m}^2$, cf. § 3.2.3). Une valeur plus élevée aurait notamment pour effet déformer légèrement le profil d'aimantation standard $m_z = -\tanh(x/\Delta_p)$ (cf. § 3.3.4). Quant au signe de D_{DM} , il fixe la chiralité de la paroi de Néel.

Dans toutes les simulations réalisées dans la section 3.3 du chapitre 3, nous avons utilisé OOMMF pour obtenir la distribution d'aimantation d'équilibre. Cependant, ces calculs sont coûteux en temps (plusieurs heures), et il peut donc être utile de disposer d'une méthode de calcul plus rapide, quitte à être légèrement moins précise. Nous allons donc voir maintenant comment les modèles 1D discutés précédemment peuvent être utilisés pour simuler une paroi de domaine confinée dans une piste.

Effets des bords de la piste

Pour une paroi idéale, c'est-à-dire droite et parallèle à l'axe y , x étant le grand axe de la piste, il est facile d'étendre le profil 1D de l'aimantation d'une paroi au cas d'une piste de largeur w finie, ce qui donne

$$\begin{cases} m_x(x, y) \approx \cos(\psi_m) \frac{1}{\cosh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right)} \\ m_y(x, y) \approx \sin(\psi_m) \frac{1}{\cosh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right)} \\ m_z(x, y) \approx -\tanh\left(\frac{x}{\Delta_p}\right) \end{cases} \text{ pour } |y| < w/2. \quad (\text{A.23})$$

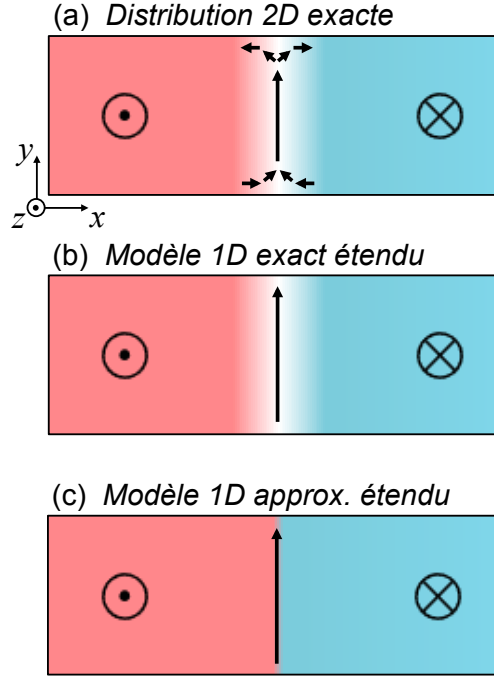


FIGURE A.10 – Pour simuler le champ de fuite d’une paroi idéale, par exemple une paroi de Bloch, on peut réaliser un calcul 2D de la distribution d’aimantation d’équilibre (a), ou bien étendre le profil 1D théorique à toute la largeur de la piste (b). On peut également utiliser un profil 1D approximatif, par exemple avec deux domaines séparés par une paroi abrupte, plus un domaine ou un dipôle pour simuler l’aimantation planaire de la paroi (c).

Pour une paroi de Bloch de chiralité gauche ($\psi_m = \pi/2$), par exemple, cette distribution d’aimantation est représentée de manière schématique dans la figure A.10b, à comparer à la distribution fournie par le calcul 2D complet (figure A.10a). La principale différence entre le calcul 2D et le profil 1D étendu est que le premier fait apparaître une petite correction près des bords de la piste. En effet, afin de minimiser le nombre de charges magnétiques et donc l’énergie démagnétisante, l’aimantation de la paroi tend à s’aligner parallèlement aux bords, c’est-à-dire perpendiculairement à la paroi.

En termes de champ de fuite, ces effets de bord affectent surtout sur la contribution de la composante planaire de l’aimantation dans une paroi de Bloch. Pour quantifier cet effet, nous avons calculé le champ de fuite d’une paroi de Bloch dans une piste de largeur $w = 500$ nm, en comparant le calcul 2D exact au modèle du profil 1D étendu. La figure A.11 montre les composantes B_y (parallèle à la paroi) et B_z au-dessus de la paroi. La différence vaut au plus $1 \mu\text{T}$ près du milieu de la piste, ce qui est largement négligeable étant donnée la précision de nos expériences. La composante B_x au-dessus de la piste n’est quant à elle pas affectée du tout par ces effets de bord. Par conséquent, le modèle défini par les équations (A.23) s’avère être une très bonne approximation de la distribution réelle d’aimantation d’une paroi de domaine confinée dans une piste, au moins dans le cas d’une paroi idéale.

Notons que les approximations du modèle 1D discutés précédemment peuvent également être utilisés. Par exemple, on peut approximer la structure en deux domaines séparées par une paroi abrupte (cf. figure A.4), auxquels on peut ajouter éventuellement un dipôle

magnétique qui s'étend sur toute la largeur de la piste pour simuler la structure interne de la paroi (figure A.10c). Les erreurs introduites par ces approximations seront similaires au cas 1D (cf. § A.3.1).

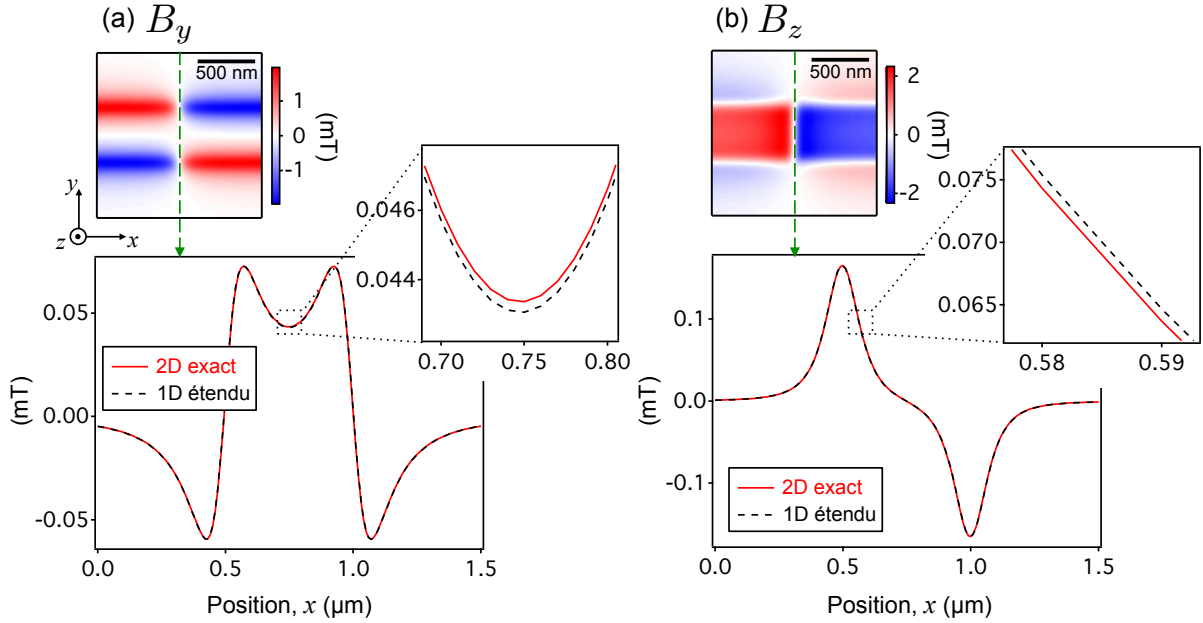


FIGURE A.11 – Composantes B_y (a) et B_z (b) au-dessus d'une paroi de Bloch confinée dans une piste de largeur $w = 500$ nm. Le calcul est effectué avec la distribution d'aimantation 2D exacte (lignes rouges continues) et avec le profil 1D étendu à la largeur de la piste (lignes noires pointillées). Les paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $d = 100$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 5$ nm.

Simulations de parois distordues

Dans les échantillons réels, les parois de domaine sont généralement distordues du fait de la présence de défauts. Nous avons d'ailleurs vu au chapitre 3 une méthode pour extraire le profil spatial de position $x_p(y)$ d'une paroi à partir des images de microscopie à centre NV (cf. § 3.4.1). Pour simuler précisément une paroi distordue, on peut à nouveau utiliser le logiciel OOMMF pour calculer la distribution 2D de l'aimantation. La forme désirée de la paroi est forcée en ajoutant des "points d'ancrage" où l'anisotropie perpendiculaire est virtuellement infinie.

Alternativement, on peut comme précédemment utiliser le profil 1D de l'aimantation et l'étendre au cas 2D d'une paroi distordue (figures A.12a et A.12b). Pour l'aimantation perpendiculaire, on peut par exemple considérer que le profil 1D $m_z(x) = -\tanh(x/\Delta_p)$ reste valable localement : il suffit de corriger ce profil de la position locale de la paroi $x_p(y)$ ainsi que de son inclinaison locale, d'angle $\phi_p(y)$ (figure A.12c). Quant à l'aimantation planaire, on peut supposer que sa direction suit de manière fidèle la forme de la paroi : pour une paroi de Bloch (resp. de Néel), l'aimantation est toujours parallèle (resp. perpendiculaire) à la tangente au profil de position de la paroi, ce qui revient à dire que ψ_m est constant en tout point de la paroi (figures A.12a et A.12b). Selon ce modèle, la

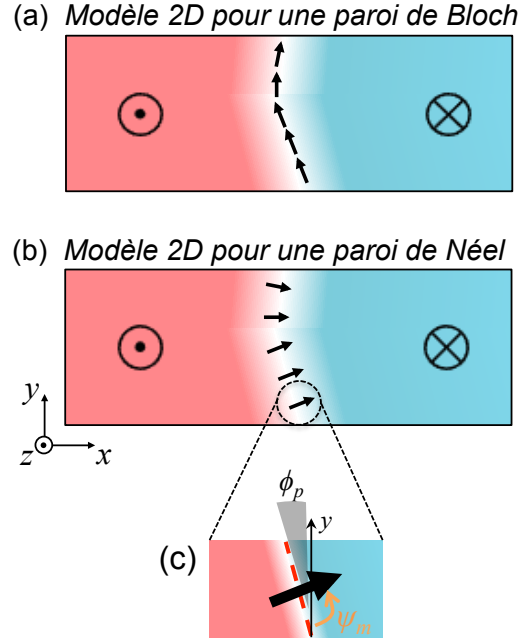


FIGURE A.12 – Pour une paroi non idéale (distordue), l’extension du modèle 1D s’effectue en supposant que l’aimantation planaire de la paroi est toujours localement parallèle à la paroi lorsqu’elle est de type Bloch, et perpendiculairement à elle quand elle est de type Néel (b). Cela revient à dire que l’angle ψ_m est constant quelque soit l’inclinaison locale $\phi_p(y)$ de la paroi (c).

distribution d’aimantation s’écrit donc finalement

$$\begin{cases} m_x(x, y) \approx \cos[\psi_m + \phi_p(y)] \frac{1}{\cosh\left(\frac{x-x_p(y)}{\Delta'_p(y)}\right)} \\ m_y(x, y) \approx \sin[\psi_m + \phi_p(y)] \frac{1}{\cosh\left(\frac{x-x_p(y)}{\Delta'_p(y)}\right)} \\ m_z(x, y) \approx -\tanh\left(\frac{x-x_p(y)}{\Delta'_p(y)}\right) \end{cases} \text{ pour } |y| < w/2, \quad (\text{A.24})$$

où $\Delta'_p(y) = \frac{\Delta_p}{\cos[\phi_p(y)]}$ est la largeur de paroi apparente selon la direction x .

Comme précédemment, une différence entre ce modèle 2D et le calcul exact est que le modèle ne prend pas en compte les effets de bord (cf. figure A.10). Nous avons quantifié cet effet sur le champ de fuite en simulant une paroi de Bloch d’inclinaison constante $\phi_p = 10^\circ$, confinée dans une piste de largeur $w = 500$ nm (figure A.13a). Là encore, l’accord entre le résultat du modèle 2D et le calcul exact est excellent, avec une erreur relative de $\approx 0.2\%$ (figure A.13b). Ainsi, le modèle défini par les équations (A.24) est une très bonne approximation de la distribution réelle d’aimantation d’une paroi de domaine confinée dans une piste, et permet de décrire une paroi de forme arbitraire.

L’autre hypothèse du modèle porte sur la distribution de l’aimantation planaire, qui est supposée suivre de manière adiabatique les distorsions de la paroi, avec un angle ψ_m constant. En réalité, ceci n’est valable que pour une paroi dont la forme est suffisamment “douce”, ce qui est a fortiori le cas d’une paroi droite inclinée comme celle simulée dans

la figure A.13. À l'inverse, en cas de distorsion de la paroi sur des distances $\lesssim 10$ nm, l'aimantation planaire s'arrangera selon une distribution non triviale de sorte à minimiser le nombre de charges magnétiques de volume. Le modèle des équations (A.24) doit donc être employé avec précaution lorsque les parois sont fortement distordues.

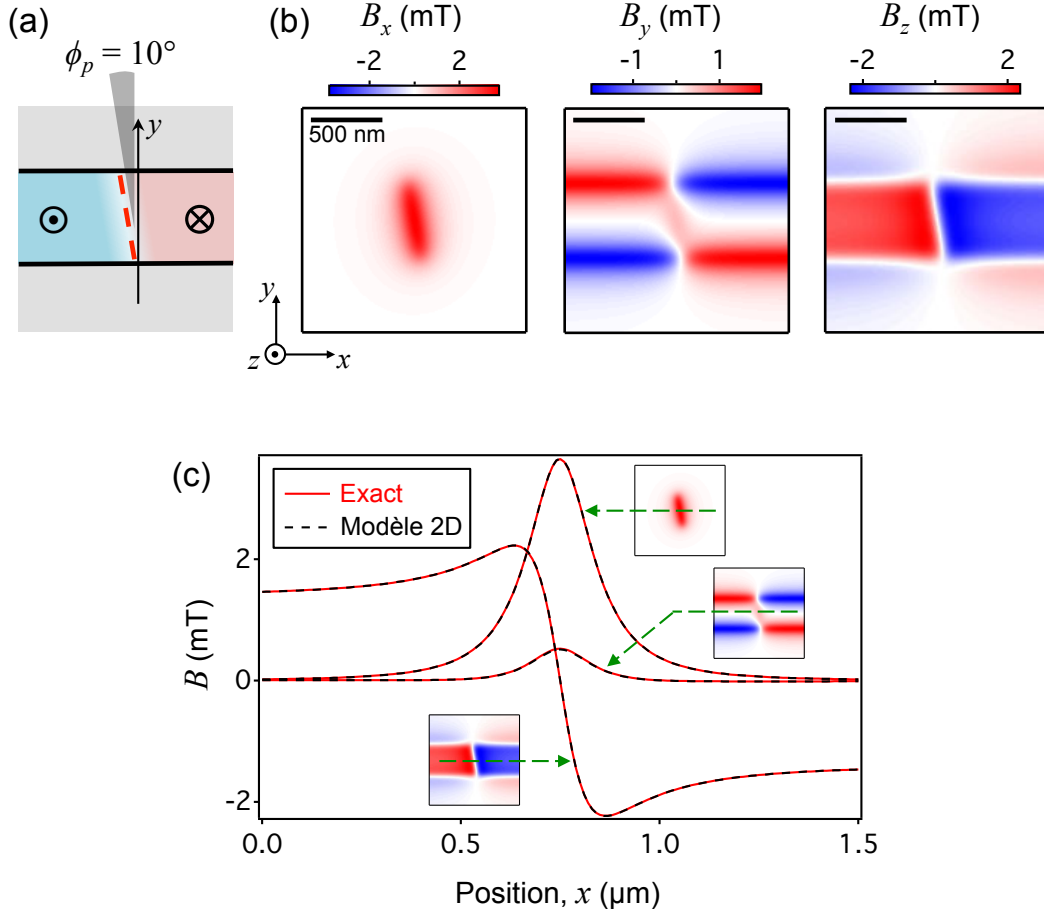


FIGURE A.13 – (a) On simule une paroi droite avec un angle d'inclinaison $\phi_p = 10^\circ$ par rapport à l'axe y . (b) Cartes des composantes B_x , B_y et B_z au-dessus d'une paroi de Bloch confinée dans une piste de largeur $w = 500$ nm. (c) Coupes prises à travers la paroi dans les images de (b). Le calcul est effectué avec la distribution d'aimantation exacte (lignes rouges continues) et avec le modèle 2D (lignes noires pointillées). Les paramètres du calcul sont : $t = 1$ nm, $d = 100$ nm, $M_s = 10^6$ A/m, $\Delta_p = 5$ nm.

Dans la section 3.3 du chapitre 3, nous avons comparé les images expérimentales aux simulations en considérant des parois droites avec un angle d'inclinaison ϕ_p . La figure A.14a reproduit une de ces images. En ajustant la simulation aux données comme expliqué dans la section 3.4.1, on peut reconstruire le profil de position $x_p(y)$ de la paroi. En utilisant ce profil $x_p(y)$, on peut alors réaliser une simulation précise du champ de fuite à l'aide du modèle 2D décrit ci-dessus. La simulation avec le profil ajusté est montrée dans la figure A.14b, à comparer avec la simulation d'une paroi droite d'angle $\phi_p = 0^\circ$ (figure A.14c).

Si l'accord visuel avec l'expérience est clairement meilleur en prenant une forme ajustée, les valeurs maximales du champ de fuite au-dessus de la paroi ne semblent pas être

significativement affectées par le modèle de paroi considéré. Cela est confirmé par l'examen d'une coupe du champ à travers la paroi (figure A.14d), qui montre que la différence de champ entre les deux modèles est bien en-dessous de l'erreur expérimentale.

Approximer le profil de position non trivial de la paroi par une paroi droite, avec une certaine inclinaison moyenne, est donc suffisant en général pour obtenir des prédictions fiables. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi d'utiliser l'approximation d'une paroi droite pour analyser les données dans la section 3.3. L'origine de cette faible sensibilité à la forme exacte de la paroi est discutée plus en détail dans l'annexe B.

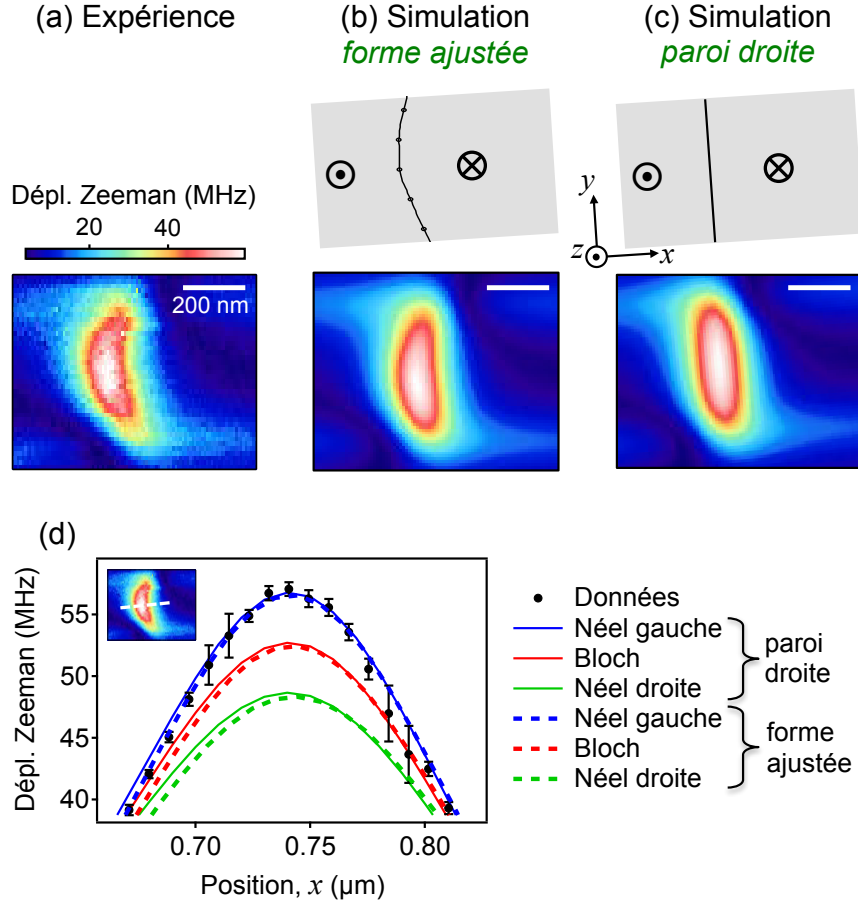


FIGURE A.14 – (a) Carte de champ d'une paroi de domaine dans une piste de Pt|Co(0.6 nm)|AlO_x, reproduite de la figure 3.13f. (b) Simulation avec un profil de position de la paroi ajusté pour reproduire au mieux l'image (a). Le profil obtenu est montré dans le schéma au-dessus de l'image. (c) Simulation d'une paroi droite d'inclinaison $\phi_p = 0^\circ$ par rapport à l'axe y . (d) Coupes prises à travers la paroi dans les images (a-c).

Incertitudes sur les prédictions théoriques du champ de fuite d'une paroi

Sommaire

B.1	Description du problème	171
B.2	Incertitude sur la contribution perpendiculaire B^\perp	172
B.3	Incertitude sur la contribution planaire B^\parallel	176
B.4	Incertitude globale	176

Dans cette annexe, nous estimons les erreurs liées au calcul du champ de fuite d'une paroi de domaine, tel qu'il est réalisé au chapitre 3 pour déduire la nature de la paroi (§ 3.3.3). Plus précisément, nous analysons comment les erreurs sur les paramètres du calcul, c'est-à-dire les paramètres géométriques et magnétiques de la structure ainsi que les paramètres du centre NV et les conditions d'acquisition, affectent les prédictions finales qui sont comparées aux données expérimentales. Cette analyse permet de quantifier la précision de la méthode pour déterminer la nature d'une paroi, et donner un intervalle de confiance sur l'intensité de l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya.

B.1 Description du problème

Comme décrit dans la section 3.3.3, le calcul du champ de fuite de la paroi, et plus particulièrement du déplacement Zeeman $\Delta f_{NV}^{\text{paroi}}(x, y)$, fait intervenir de nombreux paramètres qu'on peut réduire à l'ensemble $\{I_s, w, \phi_p, d, \Delta_p, \theta, \phi, D, E\}$, où I_s est la densité de moments magnétiques de la couche magnétique, w est la largeur de la piste, ϕ_p est l'inclinaison de la paroi par rapport à son axe naturel, d est la distance entre le centre NV et la couche magnétique, Δ_p est la largeur de la paroi, θ et ϕ sont les angles sphériques qui caractérisent l'orientation du centre NV, et D et E sont les paramètres de clivage du spin du centre NV.

Au premier abord, il pourrait sembler naturel, pour estimer l'incertitude sur les prédictions théoriques de $\Delta f_{NV}^{\text{paroi}}$, de considérer l'effet des erreurs sur chacun de ces paramètres. Cependant, il faut se rappeler que ces paramètres ne sont pas indépendants, dans le sens où d et I_s ont été déterminés à l'étape de calibration avec un jeu de paramètres $\{\theta, \phi, D, E\}$ donné (cf. § 3.3.2). Or ces paramètres $\{\theta, \phi, D, E\}$, ainsi que la hauteur de vol d et l'aimantation I_s , sont identiques lors de l'étape de calibration et lors de l'étude de la paroi, puisque le même centre NV est utilisé, avec les mêmes conditions de balayage (cf. § 3.3.1). L'effet des erreurs sur les différents paramètres de l'expérience doit donc être considéré

de manière globale, étant donné la coupe de calibration $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{piste}}(x)$ mesurée. Il nous faut donc dans un premier temps trouver la relation entre le champ de la paroi $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{paroi}}(x, y)$ et la mesure de calibration $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{piste}}(x)$, après quoi nous pourrions évaluer l’effet des erreurs sur les paramètres intermédiaires.

Pour garder une analyse simple et instructive, nous utiliserons dans cette section les expressions analytiques approximatives du champ de fuite d’une paroi droite et infiniment longue (figure B.1a). De plus, nous focalisons notre attention sur les positions où le champ de fuite est maximal, puisque c’est là que la différence – absolue comme relative – entre le champ d’une paroi de Néel et d’une paroi de Bloch est la plus grande (cf. figure 3.4). Finalement, nous utiliserons l’approximation

$$\Delta f_{\text{NV}} \approx \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h} B_{\text{NV}} , \quad (\text{B.1})$$

qui est très bonne près du champ maximum dont les valeurs sont typiquement comprises entre 1 et 4 mT (cf. § 1.3.2) et qui nous permet de considérer le champ magnétique projeté B_{NV} plutôt que le déplacement Zeeman Δf_{NV} .

On rappelle que le champ de fuite de la paroi peut s’écrire comme la somme de deux contributions, celle de la composante perpendiculaire de l’aimantation $m_z(x) = -\tanh(x/\Delta_p)$, et celle de la composante planaire $\mathbf{m}_{\parallel} = (m_x, m_y)$, d’amplitude $m_{\parallel}(x) = 1/\cosh(x/\Delta_p)$. Le champ total s’écrit

$$\mathbf{B}^{\psi_m}(x) = \mathbf{B}^{\perp}(x) + \cos \psi_m \mathbf{B}^{\parallel}(x) , \quad (\text{B.2})$$

qui dépend de l’angle $\psi_m = \tan^{-1}(m_y/m_x)$ qui caractérise la nature de la paroi ($\psi_m = \pm\pi/2$ pour une paroi de Bloch, $\psi_m = 0$ ou π pour une paroi de Néel). Nous allons calculer l’incertitude sur chacune des contributions de manière séparée, d’abord sur $\mathbf{B}^{\perp}(x)$ puis sur $\mathbf{B}^{\parallel}(x)$, avant d’estimer l’incertitude globale sur la prédiction finale du déplacement Zeeman $\Delta f_{\text{NV}}^{\text{paroi}}$. Pour illustrer la méthode, nous prendrons comme exemple les données de la figure 3.9, qui correspondent à une paroi de domaine dans une piste de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO.

B.2 Incertitude sur la contribution perpendiculaire \mathbf{B}^{\perp}

Considérons dans un premier temps la contribution de l’aimantation perpendiculaire, $\mathbf{B}^{\perp}(x)$. On se place dans la limite des films minces $t \ll d$ et de la paroi abrupte $\Delta_p \ll d$, où d est la hauteur de vol. On peut donc utiliser les équations (A.12) et (A.15) données dans l’annexe A pour obtenir le champ de fuite d’une paroi parallèle à y . Ici, on cherche à exprimer dans le référentiel xyz le champ d’une paroi formant un angle ϕ_p avec l’axe y (figure B.1a). En effectuant une simple rotation de repère autour de l’axe z , on obtient les composantes du champ de fuite à la distance d

$$\begin{cases} B_x^{\perp}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{d \cos \phi_p}{[(x - x_p) \cos \phi_p]^2 + d^2} \\ B_y^{\perp}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{d \sin \phi_p}{[(x - x_p) \cos \phi_p]^2 + d^2} \\ B_z^{\perp}(x) = -\frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{(x - x_p) \cos \phi_p}{[(x - x_p) \cos \phi_p]^2 + d^2} \end{cases} , \quad (\text{B.3})$$

où x_p est la position de la paroi (pour un y donné). La projection de $\mathbf{B}^\perp(x)$ le long de l'axe du centre NV est

$$\begin{aligned} B_{\text{NV}}^\perp(x) &= |\mathbf{B}^\perp(x) \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| \\ &= |\sin \theta \cos \phi B_x^\perp(x) + \sin \theta \sin \phi B_y^\perp(x) + \cos \theta B_z^\perp(x)| \\ &= \frac{\mu_0 M_s t}{\pi} \frac{|d \sin \theta \cos(\phi - \phi_p) - (x - x_p) \cos \phi_p \cos \theta|}{[(x - x_p) \cos \phi_p]^2 + d^2}. \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Nous allons maintenant relier $B_{\text{NV}}^\perp(x)$ à la mesure de calibration. Pour simplifier, on ne considère qu'un seul des deux bords de la piste de calibration, par exemple le bord en $x = 0$ (figure B.1b). D'après l'équation (A.12), le champ de fuite généré par un bord abrupt a pour composantes, à la distance d ,

$$\begin{cases} B_x^{\text{bord}}(x) = \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{d}{x^2 + d^2} \\ B_y^{\text{bord}}(x) = 0 \\ B_z^{\text{bord}}(x) = -\frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{x}{x^2 + d^2} \end{cases}. \quad (\text{B.5})$$

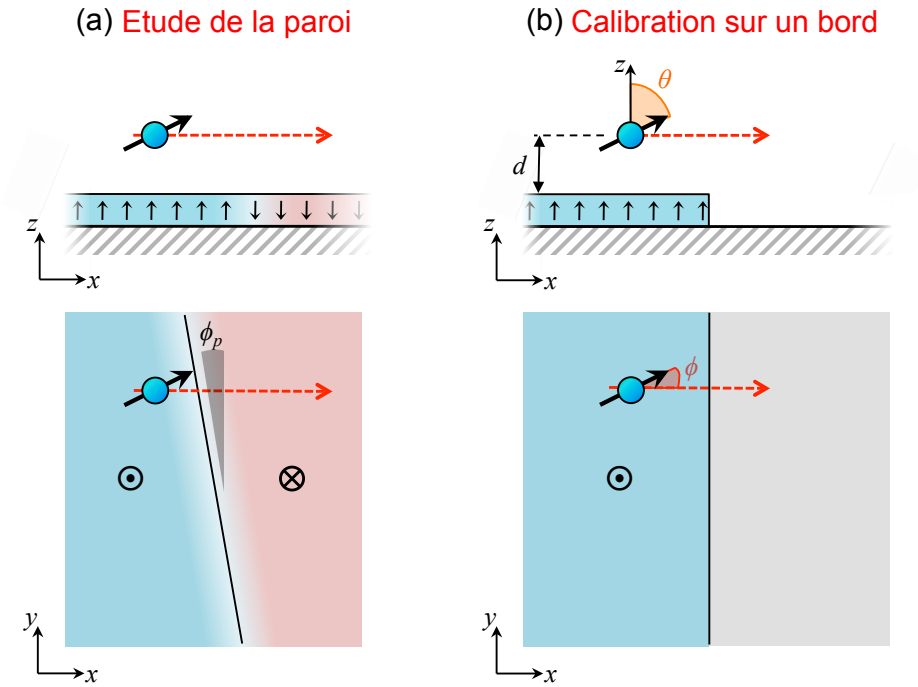


FIGURE B.1 – Pour estimer l'incertitude sur la prédiction du champ de fuite de la paroi, on analyse comment l'erreur sur la mesure de calibration sur un bord de la couche magnétique (b) se transmet en une erreur sur le champ prédit de la paroi (a). Le bord de calibration définit le référentiel xyz . La paroi est supposée infiniment longue, avec une inclinaison ϕ_p par rapport à l'axe y . Schémas du haut : vues de côté. Schémas du bas : vues de dessus.

Nous pouvons donc écrire le champ du bord projeté sur l’axe du centre NV comme

$$\begin{aligned}
 B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x) &= |\mathbf{B}^{\text{bord}}(x) \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| \\
 &= |\sin \theta \cos \phi B_x^{\text{bord}}(x) + \sin \theta \sin \phi B_y^{\text{bord}}(x) + \cos \theta B_z^{\text{bord}}(x)| \\
 &= \frac{\mu_0 M_s t}{2\pi} \frac{|d \sin \theta \cos \phi - x \cos \theta|}{x^2 + d^2} .
 \end{aligned} \tag{B.6}$$

En comparant les équations (B.4) et (B.6), on déduit la relation

$$B_{\text{NV}}^{\perp} \left(\frac{x}{\cos \phi_p} + x_p \right) = 2B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x) \Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x) , \tag{B.7}$$

où l’on définit

$$\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x) = \left| \frac{d \sin \theta \cos(\phi - \phi_p) - x \cos \theta}{d \sin \theta \cos \phi - x \cos \theta} \right| . \tag{B.8}$$

Puisque $B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x)$ est mesuré expérimentalement, on peut en principe utiliser l’équation (B.7) pour prédire $B_{\text{NV}}^{\perp}(x)$ en évaluant simplement la fonction $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x)$ comme définie par l’équation (B.8). Comme $\phi_p \sim 0$ implique que $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x) \sim 1$, il vient que, en première approximation, $B_{\text{NV}}^{\perp}(x)$ peut être obtenu sans avoir à connaître précisément le moindre paramètre. Ainsi, comme mentionné dans la section 3.3.1, la mesure de calibration, parce qu’elle est réalisée dans les mêmes conditions que la mesure sur la paroi, permet de prédire précisément le champ de la paroi alors même que ces conditions ne sont pas connues avec précision. Ceci est le point clé de notre analyse.

En réalité, $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x)$ et donc $B_{\text{NV}}^{\perp}(x)$ dépendent tout de même de certains paramètres, à savoir $\{q_i\} = \{d, \theta, \phi, \phi_p\}$, dès lors que $\phi_p \neq 0$. Pour évaluer l’importance de la connaissance des paramètres $\{q_i\}$, il convient d’examiner la sensibilité de $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x)$ vis-à-vis des erreurs sur $\{q_i\}$. Du fait des fonctions sinus et cosinus dans l’équation (B.8), la sensibilité aux variations des paramètres est minimum (dérivées partielles nulles) lorsqu’on a

- soit $\theta \sim 0$ (axe de projection perpendiculaire au plan de l’échantillon),
- soit $\theta \sim \pi/2$ (axe de projection parallèle au plan de l’échantillon) combiné à $\phi \sim \phi_p \sim 0$.

Cependant, le premier cas est difficilement atteignable dans notre expérience car le champ rf est essentiellement perpendiculaire au plan, et ne peut donc exciter efficacement la résonance d’un spin dont l’axe de quantification est également perpendiculaire au plan. Nous visons par conséquent le second cas, c’est-à-dire $\theta \sim \pi/2$ et $\phi \sim \phi_p \sim 0$. Dans ce but, nous utilisons un bord de calibration qui est aussi parallèle que possible de la paroi étudiée ($\phi_p \rightarrow 0$), et nous cherchons à avoir un axe de projection aussi perpendiculaire que possible de la paroi ($\theta \rightarrow \pi/2$ et $\phi \rightarrow 0$). C’est la raison pour laquelle nous employons des pistes perpendiculaires l’une de l’autre pour la calibration et l’étude des parois (cf. § 3.3.1). Dans le cas inverse, c’est-à-dire si $\phi_p \sim \pi/2$ (bord de calibration perpendiculaire à la paroi) avec $\theta \sim \pi/2$, on aurait $\Theta_{d,\theta,\phi,\phi_p}(x) \sim \phi - \phi_p$, directement proportionnel aux erreurs sur ϕ et ϕ_p .

Pour être plus quantitatifs, nous utilisons l’équation (B.7) pour exprimer l’incertitude sur la prédiction $B_{\text{NV}}^{\perp}(x)$ en fonction des incertitudes sur les différentes grandeurs, soit

$$\epsilon_{B^{\perp}} = \sqrt{\epsilon_{B^{\text{bord}}}^2 + \sum_i \epsilon_{\Theta/q_i}^2} . \tag{B.9}$$

Ici, $\epsilon_{B^{\text{bord}}}$ est donné par l'erreur de mesure sur $B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x)$, tandis que ϵ_{Θ/q_i} est l'incertitude sur $\Theta_{\{q_i\}}$ induite par l'erreur sur le paramètre $q_i \in \{d, \theta, \phi, \phi_p\}$, les autres paramètres étant fixés à leurs valeurs nominales, comme défini par

$$\epsilon_{\Theta/q_i} = \frac{\Theta_{\bar{q}_i + \sigma_{q_i}} - \Theta_{\bar{q}_i - \sigma_{q_i}}}{2\Theta_{\bar{q}_i}}. \quad (\text{B.10})$$

Les résultats sont résumés dans la table B.1 pour le cas correspondant à la figure 3.9e, dont le graphe est reproduit dans la figure B.2. Chaque erreur ϵ_{Θ/q_i} est évaluée pour $x = x_{\text{max}}$, qui est la position pour laquelle $B_{\text{NV}}^\perp(x)$ est maximal. On constate que la source dominante d'incertitude, bien que faible ($\approx 1\%$), est l'erreur sur ϕ_p , celles sur d , θ et ϕ ayant un effet bien moindre.

paramètre q_i	valeur nominale \bar{q}_i	incertitude σ_{q_i}	$\epsilon_{\Theta/q_i}(\%)$
d	123 nm	3 nm	< 0.1
θ	62°	2°	< 0.1
ϕ	-25°	2°	0.2
ϕ_p	2°	1°	1.1
$\epsilon_{B^\perp} = \sqrt{\epsilon_{B^\perp/w}^2 + \epsilon_{B^{\text{bord}}}^2 + \sum_i \epsilon_{\Theta/q_i}^2}$			1.5

TABLE B.1 – Estimation de l'incertitude ϵ_{Θ/q_i} sur la valeur de Θ liée au paramètre q_i . L'incertitude globale ϵ_{B^\perp} est estimée avec l'équation (B.11), en supposant que toutes les erreurs sont indépendantes. L'erreur relative sur le champ de calibration $B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x)$ est estimée à $\epsilon_{B^{\text{bord}}} \approx 1.0\%$. L'effet de l'incertitude sur la largeur de la piste induit une erreur supplémentaire qui est ici négligeable ($\epsilon_{B^\perp/w} < 0.1\%$).

En pratique, les prédictions théoriques, comme celles de la figure B.2, sont obtenues en utilisant non pas explicitement l'équation (B.7), mais plutôt le jeu de paramètres $\{I_s, d, \theta, \phi\}$ déterminé après l'étape de calibration et utilisé dans le calcul du champ de fuite. Ceci nous permet de simuler des structures plus complexes que la paroi infiniment longue considérée ici (figure B.1a), en particulier une piste de largeur finie contenant une paroi inclinée (cf. § 3.3.3). Cependant, comme mentionné plus haut, cette procédure est essentiellement équivalente, en ce qui concerne le calcul des incertitudes, à celle qui consisterait à utiliser l'équation (B.7), puisque $B_{\text{NV}}^{\text{bord}}(x)$ est complètement caractérisé par le jeu de paramètres $\{I_s, d, \theta, \phi\}$.

La principale différence vient de l'influence des bords de la piste, de largeur w , qui ajoutent une petite contribution au champ mesuré au-dessus de la paroi. L'erreur standard σ_w sur cette largeur se traduit alors en une erreur relative $\epsilon_{B^\perp/w}$ sur le champ de la paroi B_{NV}^\perp . Dans l'exemple de la figure B.2, on a $w = 1500 \pm 30$ nm, ce qui résulte en une erreur $\epsilon_{B^\perp/w} < 0.1\%$ pour le champ maximum calculé au centre de la piste, estimée en simulant directement une paroi dans une piste de largeur variable.

L'incertitude globale sur la prédiction B_{NV}^\perp pour une paroi confinée dans une piste devient finalement

$$\epsilon_{B^\perp} = \sqrt{\epsilon_{B^\perp/w}^2 + \epsilon_{B^{\text{bord}}}^2 + \sum_i \epsilon_{\Theta/q_i}^2}. \quad (\text{B.11})$$

Cette erreur globale est indiquée dans la table B.1 et vaut $\approx 1.5\%$ dans notre exemple. Elle est beaucoup plus petite que la différence relative de champ entre les configurations de Bloch et Néel, ce qui valide la pertinence de la méthode pour déterminer la nature d’une paroi.

B.3 Incertitude sur la contribution planaire \mathbf{B}^{\parallel}

On se place dans la limite $\Delta_p \ll d$, de sorte qu’on peut utiliser l’équation (A.22) pour exprimer la contribution de l’aimantation planaire au champ de fuite, $\mathbf{B}^{\parallel}(x)$. À la distance d , ses composantes s’écrivent

$$\begin{cases} B_x^{\parallel}(x) \approx \frac{1}{2}\mu_0 M_s t \Delta_p \frac{x^2 - d^2}{(x^2 + d^2)^2} \\ B_y^{\parallel}(x) = 0 \\ B_z^{\parallel}(x) \approx \mu_0 M_s t \Delta_p \frac{xd}{(x^2 + d^2)^2} \end{cases} . \quad (\text{B.12})$$

Elles sont proportionnelles au paramètre I_s et à la largeur de paroi $\Delta_p = \sqrt{A/K_{\text{eff}}}$, où A est la constante d’échange et K_{eff} la constante d’anisotropie effective. Les valeurs de A rapportées dans la littérature pour des films minces de Co et CoFeB varient entre 10 et 30 pJ/m [172, 173]. À partir de cette gamme de valeurs, on peut déduire un intervalle pour Δ_p , par exemple 15 – 25 nm pour l’échantillon de Ta|CoFeB(1 nm)|MgO étudié ici. Cela revient à une variation relative $\frac{\sigma_{\Delta_p}}{\Delta_p} \approx 25\%$ autour de la valeur centrale.

Ainsi, l’incertitude relative $\epsilon_{B^{\parallel}}$ sur le champ $\mathbf{B}^{\parallel}(x)$ est dominée par l’incertitude sur la largeur de paroi, soit $\epsilon_{B^{\parallel}} \approx \frac{\sigma_{\Delta_p}}{\Delta_p} \approx 25\%$. Toutes les autres erreurs peuvent être négligées en comparaison. Dans les simulations, on utilise la valeur de A qui fournit la valeur centrale de Δ_p , soit $A = 20$ pJ/m dans le cas présent, correspondant à $\Delta_p = 20$ nm.

B.4 Incertitude globale

Pour un angle donné ψ_m de l’aimantation planaire de la paroi, le champ de fuite projeté s’écrit

$$\begin{aligned} B_{\text{NV}}^{\psi_m}(x) &= |\mathbf{B}^{\psi_m}(x) \cdot \mathbf{u}_{\text{NV}}| \\ &= B_{\text{NV}}^{\perp}(x) + \cos \psi_m B_{\text{NV}}^{\parallel}(x) , \end{aligned} \quad (\text{B.13})$$

où il est supposé que $|B_{\text{NV}}^{\parallel}| < |B_{\text{NV}}^{\perp}|$. On en déduit l’expression de l’incertitude absolue pour $B_{\text{NV}}^{\psi_m}$ au niveau du maximum,

$$\sigma_{B^{\psi}} = \sqrt{\sigma_{B^{\perp}}^2 + \cos^2 \psi_m \sigma_{B^{\parallel}}^2} \quad (\text{B.14})$$

avec $\sigma_{B^{\perp}} = \epsilon_{B^{\perp}} B_{\text{NV}}^{\perp}$ et $\sigma_{B^{\parallel}} = \epsilon_{B^{\parallel}} B_{\text{NV}}^{\parallel}$. L’incertitude sur le déplacement Zeeman Δf_{NV} est finalement

$$\begin{aligned} \sigma_f &= \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h} \sigma_{B^{\psi}} \\ &= \frac{g_{\text{NV}} \mu_B}{h} \sqrt{\sigma_{B^{\perp}}^2 + \cos^2 \psi_m \sigma_{B^{\parallel}}^2} . \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

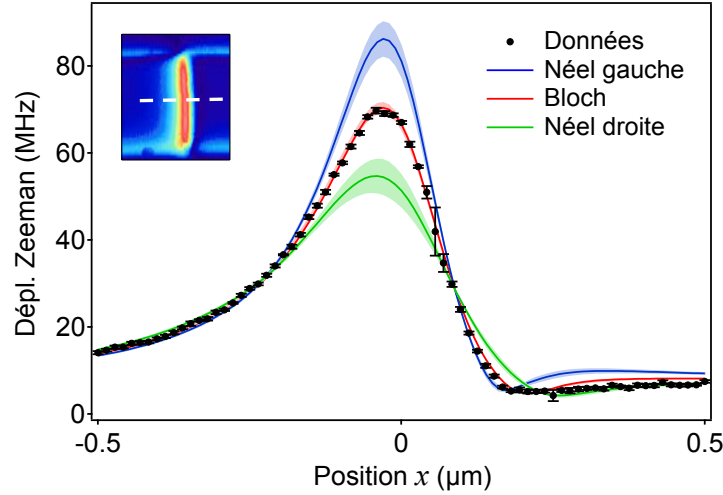


FIGURE B.2 – Coupe prise à travers la paroi de domaine dans l’image de champ montrée en insert. Les données sont reproduites de la figure 3.9e, et correspondent à une paroi dans une piste de $\text{Ta|Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1\text{ nm})|\text{MgO}$. Les nappes colorées sont les intervalles de confiances à $\pm 1\sigma_f$ (voir texte).

À partir de cette formule, on définit un intervalle de confiance $[\Delta f_{\text{NV}} - \sigma_f, \Delta f_{\text{NV}} + \sigma_f]$, qui est représenté par les nappes colorées dans la figure B.2. Dans le cas de la paroi de Bloch, l’intervalle est calculé en prenant la chiralité extrême pour chaque borne de manière à obtenir l’intervalle le plus large possible.

De ces incertitudes, on peut en déduire un intervalle de confiance pour $\cos \psi_m$, défini comme la gamme de valeurs de $\cos \psi_m$ pour laquelle les données restent en moyenne dans l’intervalle $[\Delta f_{\text{NV}} - \sigma_f, \Delta f_{\text{NV}} + \sigma_f]$, où à la fois Δf_{NV} et σ_f dépendent de ψ_m selon les équations (B.13) et (B.15). Dans notre exemple (figure B.2), on trouve ainsi $|\cos \psi_m| < 0.07$.

On peut également traduire cet intervalle en un intervalle pour l’intensité de l’interaction DM, D_{DM} . Pour cela, on utilise l’équation (3.8) qui relie $\cos \psi_m$ au champ planaire H_x selon

$$\cos \psi_m \approx \frac{\pi^2 \Delta_p \mu_0 H_x}{2 \mu_0 M_s t \ln 2}, \quad (\text{B.16})$$

qui est valable tant que $|\cos \psi_m| < 1$. De plus, nous avons vu au chapitre 3 que l’interaction DM agit comme un champ planaire selon x d’amplitude (cf. § 3.2.3)

$$H_{\text{DM}} = \frac{D_{\text{DM}}}{\Delta_p M_s \mu_0}. \quad (\text{B.17})$$

On obtient alors la relation

$$D_{\text{DM}} = \frac{2 \mu_0 M_s^2 t \ln 2}{\pi^2} \cos \psi_m, \quad (\text{B.18})$$

qui permet de convertir l’intervalle sur $\cos \psi_m$ en un intervalle sur D_{DM} . Dans l’exemple de la figure B.2, on trouve ainsi $|D_{\text{DM}}| < 0.01\text{ mJ/m}^2$.

Bibliographie

- [1] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, and T. Ono. Magnetic vortex core observation in circular dots of permalloy. *Science*, 289:930, 2000.
- [2] P. Milde, D. Köhler, J. Seidel, L. M. Eng, A. Bauer, A. Chacon, J. Kindervater, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, S. Buhrandt, C. Schütte, and A. Rosch. Unwinding of a skyrmion lattice by magnetic monopoles. *Science*, 340:1076, 2013.
- [3] B. Dlubak, M.-B. Martin, C. Deranlot, B. Servet, S. Xavier, R. Mattana, M. Sprinkle, C. Berger, W. A. de Heer, F. Petroff, A. Anane, P. Seneor, and A. Fert. Highly efficient spin transport in epitaxial graphene on SiC. *Nat. Phys.*, 8:557, 2012.
- [4] K. C. Nowack, E. M. Spanton, M. Baenninger, M. König, J. R. Kirtley, B. Kalisky, C. Ames, P. Leubner, C. Brüne, H. Buhmann, L. W. Molenkamp, D. Goldhaber-Gordon, and K. Moler. Imaging currents in HgTe quantum wells in the quantum spin Hall regime. *Nat. Mater.*, 12:787, 2013.
- [5] C. L. Degen, M. Poggio, H. J. Mamin, C. T. Rettner, and D. Rugar. Nanoscale magnetic resonance imaging. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 106:1, 2009.
- [6] T. Staudacher, F. Shi, S. Pezzagna, J. Meijer, J. Du, C. A. Meriles, F. Reinhard, and J. Wrachtrup. Nuclear magnetic resonance spectroscopy on a (5-nanometer)³ sample volume. *Science*, 339:561, 2013.
- [7] H. J. Mamin, M. Kim, M. H. Sherwood, C. T. Rettner, K. Ohno, D. D. Awschalom, and D. Rugar. Nanoscale nuclear magnetic resonance with a nitrogen-vacancy spin sensor. *Science*, 339:557, 2013.
- [8] L. T. Hall, G. C. G. Beart, E. A. Thomas, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, J. H. Cole, J. H. Manton, R. E. Scholten, F. Jelezko, J. Wrachtrup, S. Petrou, and L. C. L. Hollenberg. High spatial and temporal resolution wide-field imaging of neuron activity using quantum NV-diamond. *Sci. Rep.*, 2:401, 2012.
- [9] L. T. Hall, C. D. Hill, J. H. Cole, B. Städler, F. Caruso, P. Mulvaney, J. Wrachtrup, and L. C. L. Hollenberg. Monitoring ion-channel function in real time through quantum decoherence. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 107:18777, 2010.
- [10] D. Budker and M. Romalis. Optical magnetometry. *Nat. Phys.*, 3:227, 2007.
- [11] J. R. Kirtley. Fundamental studies of superconductors using scanning magnetic imaging. *Rep. Prog. Phys.*, 73:126501, 2010.
- [12] U. Hartmann. Magnetic Force Microscopy. *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 29:53, 1999.
- [13] M. R. Freeman and B. C. Choi. Advances in magnetic microscopy. *Science*, 294:1484, 2001.
- [14] R. Wiesendanger. Spin mapping at the nanoscale and atomic scale. *Rev. Mod. Phys.*, 81:1495, 2009.
- [15] P. Mansfield. Snapshot magnetic resonance imaging (nobel lecture). *Angew. Chem. Int. Ed.*, 43:5456, 2004.

- [16] M. Poggio and C. L. Degen. Force-detected nuclear magnetic resonance: recent advances and future challenges. *Nanotechnology*, 21:342001, 2010.
- [17] B. M. Chernobrod and G. P. Berman. Spin microscope based on optically detected magnetic resonance. *J. Appl. Phys.*, 97:014903, 2005.
- [18] S. K. Sekatskii and V. S. Letokhov. Nanometer-resolution scanning optical microscope with resonance excitation of the fluorescence of the samples from a single-atom excited center. *J. Exp. Theor. Phys. Lett.*, 63:319, 1996.
- [19] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, and J. L. O’Brien. Quantum computers. *Nature*, 464:45, 2010.
- [20] C. Monroe and J. Kim. Scaling the ion trap quantum processor. *Science*, 339:1164, 2013.
- [21] M. H. Devoret and R. J. Schoelkopf. Superconducting circuits for quantum information: An outlook. *Science*, 339:1169, 2013.
- [22] D. D. Awschalom, L. C. Bassett, A. S. Dzurak, E. L. Hu, and J. R. Petta. Quantum spintronics: Engineering and manipulating atom-like spins in semiconductors. *Science*, 339(6124):1174, 2013.
- [23] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and L. C. L. Hollenberg. The nitrogen-vacancy colour centre in diamond. *Phys. Rep.*, 528:1, 2013.
- [24] A. Gruber, A. Dra, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. Von Borczyskowski. Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers. *Science*, 276:2012, 1997.
- [25] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, and J. Wrachtrup. Observation of coherent oscillations in a single electron spin. *Phys. Rev. Lett.*, 92:076401, 2004.
- [26] M. V. Gurudev Dutt, L. Childress, L. Jiang, E. Togan, J. Maze, F. Jelezko, A. S. Zibrov, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Quantum register based on individual electronic and nuclear spin qubits in diamond. *Science*, 316:1312, 2007.
- [27] P. Neumann, N. Mizuochi, F. Rempp, P. Hemmer, H. Watanabe, S. Yamasaki, V. Jacques, T. Gaebel, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Multipartite entanglement among single spins in diamond. *Science*, 320:1326, 2008.
- [28] W. Pfaff, B. J. Hensen, H. Bernien, S. B. van Dam, M. S. Blok, T. H. Taminiau, M. J. Tiggelman, R. N. Schouten, M. Markham, D. J. Twitchen, and R. Hanson. Unconditional quantum teleportation between distant solid-state quantum bits. *Science*, 345:532, 2014.
- [29] J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, and M. D. Lukin. High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution. *Nat. Phys.*, 4:810, 2008.
- [30] J. R. Maze, P. L. Stanwix, J. S. Hodges, S. Hong, J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M. V. Gurudev Dutt, E. Togan, A. S. Zibrov, A. Yacoby, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin. Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond. *Nature*, 455:644, 2008.
- [31] G. Balasubramanian, I. Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P. R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschkitsch, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Nanoscale imaging magnetometry with

- diamond spins under ambient conditions. *Nature*, 455:648, 2008.
- [32] C. L. Degen. Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor. *Appl. Phys. Lett.*, 92:243111, 2008.
 - [33] L. Rondin, J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-F. Roch, P. Maletinsky, and V. Jacques. Magnetometry with nitrogen-vacancy defects in diamond. *Rep. Prog. Phys.*, 77:056503, 2014.
 - [34] J.-P. Tetienne, L. Rondin, P. Spinicelli, M. Chipaux, T. Debuisschert, J.-F. Roch, and V. Jacques. Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: an application to qualitative all-optical magnetic imaging. *New J. Phys.*, 14:103033, 2012.
 - [35] L. Rondin, J.-P. Tetienne, P. Spinicelli, C. Dal Savio, K. Karrai, G. Dantelle, A. Thiaville, S. Rohart, J.-F. Roch, and V. Jacques. Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer. *Appl. Phys. Lett.*, 100:153118, 2012.
 - [36] L. Rondin, J.-P. Tetienne, S. Rohart, A. Thiaville, T. Hingant, P. Spinicelli, J.-F. Roch, and V. Jacques. Stray-field imaging of magnetic vortices with a single diamond spin. *Nat. Commun.*, 4:2279, 2013.
 - [37] J.-P. Tetienne, T. Hingant, L. Rondin, S. Rohart, A. Thiaville, J.-F. Roch, and V. Jacques. Quantitative stray field imaging of a magnetic vortex core. *Phys. Rev. B*, 88:214408, 2013.
 - [38] J.-P. Tetienne, T. Hingant, L. Rondin, S. Rohart, A. Thiaville, E. Jué, G. Gaudin, J.-F. Roch, and V. Jacques. Nitrogen-vacancy-center imaging of bubble domains in a 6-Å film of cobalt with perpendicular magnetization. *J. Appl. Phys.*, 115:17D501, 2014.
 - [39] J.-P. Tetienne, T. Hingant, L. J. Martinez, S. Rohart, A. Thiaville, L. Herrera Diez, K. Garcia, J.-P. Adam, J.-V. Kim, J.-F. Roch, M. Miron, G. Gaudin, L. Vila, B. Ocker, D. Ravelosona, and V. Jacques. The nature of domain walls in ultrathin ferromagnets revealed by scanning nanomagnetometry. *preprint arXiv*, 1410.1313, 2014.
 - [40] J.-P. Tetienne, T. Hingant, J.-V. Kim, L. Herrera Diez, J.-P. Adam, K. Garcia, J.-F. Roch, S. Rohart, A. Thiaville, D. Ravelosona, and V. Jacques. Nanoscale imaging and control of domain-wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope. *Science*, 344:1366, 2014.
 - [41] J.-P. Tetienne, T. Hingant, L. Rondin, A. Cavaillès, L. Mayer, G. Dantelle, T. Gacoin, J. Wrachtrup, J.-F. Roch, and V. Jacques. Spin relaxometry of single nitrogen-vacancy defects in diamond nanocrystals for magnetic noise sensing. *Phys. Rev. B*, 87:235436, 2013.
 - [42] P. M. Koenraad and M. E. Flatté. Single dopants in semiconductors. *Nat. Mater.*, 10:91, 2011.
 - [43] A. M. Zaitsev. *Optical Properties of Diamond: A Data Handbook*. Springer, 2000.
 - [44] R. Hanson and D. D. Awschalom. Coherent manipulation of single spins in semiconductors. *Nature*, 453:1043, 2008.
 - [45] L. Childress and R. Hanson. Diamond NV centers for quantum computing and quantum networks. *MRS Bulletin*, 38:134, 2013.

- [46] D. M. Toyli, L. C. Bassett, B. B. Buckley, G. Calusine, and D. D. Awschalom. Engineering and quantum control of single spins in semiconductors. *MRS Bulletin*, 38:139, 2013.
- [47] E. Gibney. Quantum physics: Flawed to perfection. *Nature*, 505:472, 2014.
- [48] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, and L. C. L. Hollenberg. The negatively charged nitrogen-vacancy centre in diamond: the electronic solution. *New J. Phys.*, 13:025019, 2011.
- [49] J. R. Maze, A. Gali, E. Togan, Y. Chu, A. Trifonov, E. Kaxiras, and M. D. Lukin. Properties of nitrogen-vacancy centers in diamond: the group theoretic approach. *New J. Phys.*, 13:025025, 2011.
- [50] P. Deák, B. Aradi, M. Kaviani, T. Frauenheim, and A. Gali. Formation of NV centers in diamond: A theoretical study based on calculated transitions and migration of nitrogen and vacancy related defects. *Phys. Rev. B*, 89:075203, 2014.
- [51] A. Gali, M. Fyta, and E. Kaxiras. Ab initio supercell calculations on nitrogen-vacancy center in diamond: Electronic structure and hyperfine tensors. *Phys. Rev. B*, 77:155206, 2008.
- [52] J. Larsson and P. Delaney. Electronic structure of the nitrogen-vacancy center in diamond from first-principles theory. *Phys. Rev. B*, 77:165201, 2008.
- [53] F. Hossain, M. Doherty, H. Wilson, and L. C. L. Hollenberg. Ab initio electronic and optical properties of the N-V⁻ center in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 101:226403, 2008.
- [54] L. Rondin. *Réalisation d'un magnétomètre à centre coloré NV du diamant*. PhD thesis, École Normale Supérieure de Cachan, 2012.
- [55] A. Alkauskas, B. B. Buckley, D. D. Awschalom, and C. G. Van de Walle. First-principles theory of the luminescence lineshape for the triplet transition in diamond NV centre. *New J. Phys.*, 16:073026, 2014.
- [56] V. Jacques, J. D. Murray, F. Marquier, D. Chauvat, F. Grosshans, F. Treussart, and J.-F. Roch. Enhancing single-molecule photostability by optical feedback from quantum jump detection. *Appl. Phys. Lett.*, 93:203307, 2008.
- [57] B. Mahler, P. Spinicelli, S. Buil, X. Quelin, J.-P. Hermier, and B. Dubertret. Towards non-blinking colloidal quantum dots. *Nat. Mater.*, 7:659, 2008.
- [58] L. J. Rogers, R. L. McMurtrie, M. J. Sellars, and N. B. Manson. Time-averaging within the excited state of the nitrogen-vacancy centre in diamond. *New J. Phys.*, 11:063007, 2009.
- [59] M. W. Doherty, F. Dolde, H. Fedder, F. Jelezko, J. Wrachtrup, N. B. Manson, and L. C. L. Hollenberg. Theory of the ground-state spin of the NV⁻ center in diamond. *Phys. Rev. B*, 85:205203, 2012.
- [60] V. M. Acosta, E. Bauch, M. P. Ledbetter, A. Waxman, L.-S. Bouchard, and D. Budker. Temperature dependence of the nitrogen-vacancy magnetic resonance in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 104:070801, 2010.
- [61] N. Manson, J. Harrison, and M. Sellars. Nitrogen-vacancy center in diamond: Model of the electronic structure and associated dynamics. *Phys. Rev. B*, 74:104303, 2006.
- [62] L. Robledo, H. Bernien, T. Van Der Sar, and R. Hanson. Spin dynamics in the optical cycle of single nitrogen-vacancy centres in diamond. *New J. Phys.*, 13:025013, 2011.

2011.

- [63] C. P. Slichter. *Principles of magnetic resonance*. Springer, 1990.
- [64] S. Ferro. Synthesis of diamond. *J. Mater. Chem.*, 12:2843, 2002.
- [65] F. Jelezko and J. Wrachtrup. Single defect centres in diamond: A review. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 203:3207, 2006.
- [66] G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuchi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tisler, V. Jacques, P. R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond. *Nat. Mater.*, 8:383, 2009.
- [67] Y.-R. Chang, H.-Y. Lee, K. Chen, C.-C. Chang, D.-S. Tsai, C.-C. Fu, T.-S. Lim, Y.-K. Tzeng, C.-Y. Fang, C.-C. Han, H.-C. Chang, and W. Fann. Mass production and dynamic imaging of fluorescent nanodiamonds. *Nat. Nanotechnol.*, 3:284, 2008.
- [68] O. Faklaris, D. Garrot, V. Joshi, F. Druon, J.-P. Boudou, T. Sauvage, P. Georges, P. A. Curmi, and F. Treussart. Detection of single photoluminescent diamond nanoparticles in cells and study of the internalization pathway. *Small*, 4:2236, 2008.
- [69] A. Jarmola, V. M. Acosta, K. Jensen, S. Chemerisov, and D. Budker. Temperature- and magnetic-field-dependent longitudinal spin relaxation in nitrogen-vacancy ensembles in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 108:197601, 2012.
- [70] J. R. Maze, A. Dréau, V. Waselowski, H. Duarte, J.-F. Roch, and V. Jacques. Free induction decay of single spins in diamond. *New J. Phys.*, 14:103041, 2012.
- [71] A. Laraoui, J. S. Hodges, and C. A. Meriles. Nitrogen-vacancy-assisted magnetometry of paramagnetic centers in an individual diamond nanocrystal. *Nano Lett.*, 12:3477, 2012.
- [72] P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac, and M. D. Lukin. Room-temperature quantum bit memory exceeding one second. *Science*, 336:1283, 2012.
- [73] L. Childress, M. V. Gurudev Dutt, J. M. Taylor, A. S. Zibrov, F. Jelezko, J. Wrachtrup, P. R. Hemmer, and M. D. Lukin. Coherent dynamics of coupled electron and nuclear spin qubits in diamond. *Science*, 314:281, 2006.
- [74] G. de Lange, D. Ristè, V. Dobrovitski, and R. Hanson. Single-spin magnetometry with multipulse sensing sequences. *Phys. Rev. Lett.*, 106:080802, 2011.
- [75] C. Ryan, J. Hodges, and D. Cory. Robust decoupling techniques to extend quantum coherence in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 105:200402, 2010.
- [76] B. Naydenov, F. Dolde, L. Hall, C. Shin, H. Fedder, L. Hollenberg, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Dynamical decoupling of a single-electron spin at room temperature. *Phys. Rev. B*, 83:081201, 2011.
- [77] N. Bar-Gill, L. M. Pham, A. Jarmola, D. Budker, and R. L. Walsworth. Solid-state electronic spin coherence time approaching one second. *Nat. Commun.*, 4:1743, 2013.
- [78] A. Dréau, J.-R. Maze, M. Lesik, J.-F. Roch, and V. Jacques. High-resolution spectroscopy of single NV defects coupled with nearby ^{13}C nuclear spins in diamond. *Phys. Rev. B*, 85:134107, 2012.

- [79] M. W. Doherty, V. V. Struzhkin, D. A. Simpson, L. P. McGuinness, Y. Meng, A. Stacey, T. J. Karle, R. J. Hemley, N. B. Manson, L. C. L. Hollenberg, and S. Prawer. Electronic properties and metrology applications of the diamond NV center under pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 112:047601, 2014.
- [80] F. Dolde, H. Fedder, M. W. Doherty, T. Nöbauer, F. Rempp, G. Balasubramanian, T. Wolf, F. Reinhard, L. C. L. Hollenberg, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Electric-field sensing using single diamond spins. *Nat. Phys.*, 7:459, 2011.
- [81] F. Dolde, M. W. Doherty, J. Michl, I. Jakobi, B. Naydenov, S. Pezzagna, J. Meijer, P. Neumann, F. Jelezko, N. B. Manson, and J. Wrachtrup. Nanoscale detection of a single fundamental charge in ambient conditions using the NV center in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 112:097603, 2014.
- [82] S. Felton, A. Edmonds, M. Newton, P. Martineau, D. Fisher, D. Twitchen, and J. Baker. Hyperfine interaction in the ground state of the negatively charged nitrogen vacancy center in diamond. *Phys. Rev. B*, 79:075203, 2009.
- [83] T. P. Mayer Alegre, C. Santori, G. Medeiros-Ribeiro, and R. G. Beausoleil. Polarization-selective excitation of nitrogen vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. B*, 76:165205, 2007.
- [84] B. J. Maertz, A. P. Wijnheijmer, G. D. Fuchs, M. E. Nowakowski, and D. D. Awschalom. Vector magnetic field microscopy using nitrogen vacancy centers in diamond. *Appl. Phys. Lett.*, 96:092504, 2010.
- [85] S. Steinert, F. Dolde, P. Neumann, A. Aird, B. Naydenov, G. Balasubramanian, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. High sensitivity magnetic imaging using an array of spins in diamond. *Rev. Sci. Instrum.*, 81:043705, 2010.
- [86] A. Faraon, P. E. Barclay, C. Santori, K.-M. C. Fu, and R. G. Beausoleil. Resonant enhancement of the zero-phonon emission from a colour centre in a diamond cavity. *Nat. Photon.*, 5:301, 2011.
- [87] J. P. Hadden, J. P. Harrison, A. C. Stanley-Clarke, L. Marseglia, Y.-L. D. Ho, B. R. Patton, J. L. O'Brien, and J. G. Rarity. Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under microfabricated integrated solid immersion lenses. *Appl. Phys. Lett.*, 97:241901, 2010.
- [88] T. M. Babinec, B. J. M. Hausmann, M. Khan, Y. Zhang, J. R. Maze, P. R. Hemmer, and M. Loncar. A diamond nanowire single-photon source. *Nat. Nanotechnol.*, 5:195, 2010.
- [89] A. Dréau, M. Lesik, L. Rondin, P. Spinicelli, O. Arcizet, J.-F. Roch, and V. Jacques. Avoiding power broadening in optically detected magnetic resonance of single NV defects for enhanced dc magnetic field sensitivity. *Phys. Rev. B*, 84:195204, 2011.
- [90] G. Fuchs, V. Dobrovitski, R. Hanson, A. Batra, C. Weis, T. Schenkel, and D. Awschalom. Excited-state spectroscopy using single spin manipulation in diamond. *Physical Review Letters*, 101:117601, 2008.
- [91] P. Neumann, R. Kolesov, V. Jacques, J. Beck, J. Tisler, A. Batalov, L. Rogers, N. B. Manson, G. Balasubramanian, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Excited-state spectroscopy of single NV defects in diamond using optically detected magnetic resonance. *New J. Phys.*, 11:013017, 2009.
- [92] G. D. Fuchs, A. L. Falk, V. V. Dobrovitski, and D. D. Awschalom. Spin coherence during optical excitation of a single nitrogen-vacancy center in diamond. *Phys. Rev.*

- Lett.*, 108:157602, 2012.
- [93] A. Beveratos. *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant : application à la cryptographie quantique*. PhD thesis, Université Paris XI, 2002.
 - [94] N. Manson and R. McMurtrie. Issues concerning the nitrogen-vacancy center in diamond. *J. Lumin.*, 127:98, 2007.
 - [95] N. B. Manson, L. Rogers, and M. W. Doherty. Optically induced spin polarisation of the NV⁻ centre in diamond: role of electron-vibration interaction. *preprint arXiv*, 1011.2840, 2010.
 - [96] R. J. Epstein, F. M. Mendoza, Y. K. Kato, and D. D. Awschalom. Anisotropic interactions of a single spin and dark-spin spectroscopy in diamond. *Nat. Phys.*, 1:94, 2005.
 - [97] <http://www.akiyamaprobe.com>.
 - [98] T. Akiyama, U. Staufer, N. F. de Rooij, P. Frederix, and A. Engel. Symmetrically arranged quartz tuning fork with soft cantilever for intermittent contact mode atomic force microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, 74:112, 2003.
 - [99] J. Tisler, T. Oeckinghaus, R. J. Stöhr, R. Kolesov, R. Reuter, F. Reinhard, and J. Wrachtrup. Single defect center scanning near-field optical microscopy on graphene. *Nano Lett.*, 13:3152, 2013.
 - [100] A. W. Schell, P. Engel, J. F. M. Werra, C. Wolff, K. Busch, and O. Benson. Scanning single quantum emitter fluorescence lifetime imaging: Quantitative analysis of the local density of photonic states. *Nano Lett.*, 14:2623, 2014.
 - [101] L. Rondin, G. Dantelle, A. Slablab, F. Grosshans, F. Treussart, P. Bergonzo, S. Peruchas, T. Gacoin, M. Chaigneau, H.-C. Chang, V. Jacques, and J.-F. Roch. Surface-induced charge state conversion of nitrogen-vacancy defects in nanodiamonds. *Phys. Rev. B*, 82:115449, 2010.
 - [102] A. Cuche, Y. Sonnefraud, O. Faklaris, D. Garrot, J.-P. Boudou, T. Sauvage, J.-F. Roch, F. Treussart, and S. Huant. Diamond nanoparticles as photoluminescent nanoprobes for biology and near-field optics. *J. Lumin.*, 129:1475, 2009.
 - [103] A. Cuche, O. Mollet, A. Drezet, and S. Huant. Deterministic quantum plasmonics. *Nano Lett.*, 10:4566, 2010.
 - [104] A. Hubert and R. Schäfer. *Magnetic domains*. Springer, 1998.
 - [105] P. Fischer, M.-Y. Im, S. Kasai, K. Yamada, T. Ono, and A. Thiaville. X-ray imaging of vortex cores in confined magnetic structures. *Phys. Rev. B*, 83:212402, 2011.
 - [106] R. Antos, Y. Otani, and J. Shibata. Magnetic vortex dynamics. *J. Phys. Soc. Jap.*, 77:031004, 2008.
 - [107] B. Pigeau, G. de Loubens, O. Klein, A. Riegler, F. Lochner, G. Schmidt, L. W. Molenkamp, V. S. Tiberkevich, and A. N. Slavin. A frequency-controlled magnetic vortex memory. *Appl. Phys. Lett.*, 96:132506, 2010.
 - [108] V. S. Pribiag, I. N. Krivorotov, G. D. Fuchs, P. M. Braganca, O. Ozatay, J. C. Sankey, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman. Magnetic vortex oscillator driven by d.c. spin-polarized current. *Nat. Phys.*, 3:498, 2007.
 - [109] R. Schoenfeld and W. Harneit. Real time magnetic field sensing and imaging using

- a single spin in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 106:030802, 2011.
- [110] <http://math.nist.gov/oommf>.
 - [111] M. S. Grinolds, S. Hong, P. Maletinsky, L. Luan, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, and A. Yacoby. Nanoscale magnetic imaging of a single electron spin under ambient conditions. *Nat. Phys.*, 9:215, 2013.
 - [112] P. Maletinsky, S. Hong, M. S. Grinolds, B. Hausmann, M. D. Lukin, R. L. Walsworth, M. Loncar, and A. Yacoby. A robust scanning diamond sensor for nanoscale imaging with single nitrogen-vacancy centres. *Nat. Nanotechnol.*, 7:320, 2012.
 - [113] B. Buchler, T. Kalkbrenner, C. Hettich, and V. Sandoghdar. Measuring the quantum efficiency of the optical emission of single radiating dipoles using a scanning mirror. *Phys. Rev. Lett.*, 95:063003, 2005.
 - [114] K. Shigeto, T. Okuno, K. Mibu, T. Shinjo, and T. Ono. Magnetic force microscopy observation of antivortex core with perpendicular magnetization in patterned thin film of permalloy. *Appl. Phys. Lett.*, 80:4190, 2002.
 - [115] J. M. García-Martín, A. Thiaville, J. Miltat, T. Okuno, L. Vila, and L. Piraux. Imaging magnetic vortices by magnetic force microscopy: experiments and modelling. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 37:965, 2004.
 - [116] <http://www.seagate.com>.
 - [117] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Nonclassical radiation from diamond nanocrystals. *Phys. Rev. A*, 64:061802, 2001.
 - [118] R. Beams, D. Smith, T. W. Johnson, S.-H. Oh, L. Novotny, and A. N. Vamivakas. Nanoscale fluorescence lifetime imaging of an optical antenna with a single diamond NV center. *Nano Lett.*, 13:3807, 2013.
 - [119] S. O. Valenzuela and M. Tinkham. Direct electronic measurement of the spin hall effect. *Nature*, 442:176, 2006.
 - [120] D. Lebeugle, A. Mougin, M. Viret, D. Colson, J. Allibe, H. Béa, E. Jacquet, C. Deranlot, M. Bibes, and A. Barthélémy. Exchange coupling with the multiferroic compound BiFeO₃ in antiferromagnetic multidomain films and single-domain crystals. *Phys. Rev. B*, 81:134411, 2010.
 - [121] S. S. P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, 320:190, 2008.
 - [122] P. F. Carcia, A. D. Meinhaldt, and A. Suna. Perpendicular magnetic anisotropy in Pd/Co thin film layered structures. *Appl. Phys. Lett.*, 47:178, 1985.
 - [123] W. B. Zeper, F. J. A. M. Greidanus, P. F. Carcia, and C. R. Fincher. Perpendicular magnetic anisotropy and magneto-optical Kerr effect of vapor-deposited Co/Pt-layered structures. *J. Appl. Phys.*, 65:4971, 1989.
 - [124] B. N. Engel, M. H. Wiedmann, R. A. Van Leeuwen, and C. M. Falco. Anomalous magnetic anisotropy in ultrathin transition metals. *Phys. Rev. B*, 48:9894, 1993.
 - [125] B. Újfalussy, L. Szunyogh, P. Bruno, and P. Weinberger. First-principles calculation of the anomalous perpendicular anisotropy in a Co Monolayer on Au(111). *Phys. Rev. Lett.*, 77:1805, 1996.
 - [126] L. Zhong, M. Kim, X. Wang, and A. J. Freeman. Overlayer-induced anomalous interface magnetocrystalline anisotropy in ultrathin Co films. *Phys. Rev. B*, 53:97705,

- 1996.
- [127] N. Nakajima, T. Koide, T. Shidara, H. Miyauchi, H. Fukutani, A. Fujimori, K. Iio, T. Katayama, M. Nývlt, and Y. Suzuki. Perpendicular magnetic anisotropy caused by interfacial hybridization via enhanced orbital moment in Co/Pt multilayers: Magnetic circular x-ray dichroism study. *Phys. Rev. Lett.*, 81:5229, 1998.
 - [128] S. Ikeda, K. Miura, H. Yamamoto, K. Mizunuma, H. D. Gan, M. Endo, S. Kanai, J. Hayakawa, F. Matsukura, and H. Ohno. A perpendicular-anisotropy CoFeB-MgO magnetic tunnel junction. *Nat. Mater.*, 9:721, 2010.
 - [129] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman. Spin-torque switching with the giant spin Hall effect of tantalum. *Science*, 336:555, 2012.
 - [130] C. Burrowes, N. Vernier, J.-P. Adam, L. Herrera Diez, K. Garcia, I. Barisic, G. Agnus, S. Eimer, J.-V. Kim, T. Devolder, A. Lamperti, R. Mantovan, B. Ockert, E. E Fullerton, and D. Ravelosona. Low depinning fields in Ta-CoFeB-MgO ultra-thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Appl. Phys. Lett.*, 103:182401, 2013.
 - [131] I. M. Miron, G. Gaudin, S. Auffret, B. Rodmacq, A. Schuhl, S. Pizzini, J. Vogel, and P. Gambardella. Current-driven spin torque induced by the Rashba effect in a ferromagnetic metal layer. *Nat. Mater.*, 9:230, 2010.
 - [132] I. M. Miron, T. Moore, H. Szambolics, L. D. Buda-Prejbeanu, S. Auffret, B. Rodmacq, S. Pizzini, J. Vogel, M. Bonfim, A. Schuhl, and G. Gaudin. Fast current-induced domain-wall motion controlled by the Rashba effect. *Nat. Mater.*, 10:419, 2011.
 - [133] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella. Perpendicular switching of a single ferromagnetic layer induced by in-plane current injection. *Nature*, 476:189, 2011.
 - [134] D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Atkinson, D. Petit, and R. P. Cowburn. Magnetic domain-wall logic. *Science*, 309:1688, 2005.
 - [135] C. Chappert, A. Fert, and F. N. van Dau. The emergence of spin electronics in data storage. *Nat. Mater.*, 6:813, 2007.
 - [136] M. Hayashi, L. Thomas, C. Rettner, R. Moriya, Y. B. Bazaliy, and S. S. P. Parkin. Current driven domain wall velocities exceeding the spin angular momentum transfer rate in permalloy nanowires. *Phys. Rev. Lett.*, 98:037204, 2007.
 - [137] Y. Zhang, W. S. Zhao, D. Ravelosona, J.-O. Klein, J. V. Kim, and C. Chappert. Perpendicular-magnetic-anisotropy CoFeB racetrack memory. *J. Appl. Phys.*, 111:093925, 2012.
 - [138] M. Kläui, P.-O. Jubert, R. Allenspach, A. Bischof, J. Bland, G. Faini, U. Rüdiger, C. Vaz, L. Vila, and C. Vouille. Direct observation of domain-wall configurations transformed by spin currents. *Phys. Rev. Lett.*, 95:026601, 2005.
 - [139] M.-Y. Im, L. Bocklage, P. Fischer, and G. Meier. Direct observation of stochastic domain-wall depinning in magnetic nanowires. *Phys. Rev. Lett.*, 102:147204, 2009.
 - [140] S. Meckler, N. Mikuszeit, A. Preßler, E. Vedmedenko, O. Pietzsch, and R. Wiesendanger. Real-space observation of a right-rotating inhomogeneous cycloidal spin spiral by spin-polarized scanning tunneling microscopy in a triple axes vector ma-

- gnet. *Phys. Rev. Lett.*, 103:157201, 2009.
- [141] G. Chen, J. Zhu, A. Quesada, J. Li, A. T. N'Diaye, Y. Huo, T. P. Ma, Y. Chen, H. Y. Kwon, C. Won, Z. Q. Qiu, A. K. Schmid, and Y. Z. Wu. Novel chiral magnetic domain wall structure in Fe/Ni/Cu(001) films. *Phys. Rev. Lett.*, 110:177204, 2013.
 - [142] S.-G. Je, D.-H. Kim, S.-C. Yoo, B.-C. Min, K.-J. Lee, and S.-B. Choe. Asymmetric magnetic domain-wall motion by the Dzyaloshinskii-Moriya interaction. *Phys. Rev. B*, 88:214401, 2013.
 - [143] S. V. Tarasenko, A. Stankiewicz, V. V. Tarasenko, and J. Ferré. Bloch wall dynamics in ultrathin ferromagnetic films. *J. Magn. Magn. Mater.*, 189:19, 1998.
 - [144] T. Koyama, D. Chiba, K. Ueda, K. Kondou, H. Tanigawa, S. Fukami, T. Suzuki, N. Ohshima, N. Ishiwata, Y. Nakatani, K. Kobayashi, and T. Ono. Observation of the intrinsic pinning of a magnetic domain wall in a ferromagnetic nanowire. *Nat. Mater.*, 10:194, 2011.
 - [145] D.C. Ralph and M.D. Stiles. Spin transfer torques. *J. Magn. Magn. Mater.*, 320:1190, 2008.
 - [146] A. Brataas, A. D. Kent, and H. Ohno. Current-induced torques in magnetic materials. *Nat. Mater.*, 11:372, 2012.
 - [147] J. H. Franken, M. Herps, H. J. M. Swagten, and B. Koopmans. Tunable chiral spin texture in magnetic domain-walls. *Sci. Rep.*, 4:5248, 2014.
 - [148] S. Emori, U. Bauer, S.-M. Ahn, E. Martinez, and G. S. D. Beach. Current-driven dynamics of chiral ferromagnetic domain walls. *Nat. Mater.*, 12:611, 2013.
 - [149] K.-S. Ryu, L. Thomas, S.-H. Yang, and S. Parkin. Chiral spin torque at magnetic domain walls. *Nat. Nanotechnol.*, 8:527, 2013.
 - [150] E. Martinez, S. Emori, and G. S. D. Beach. Current-driven domain wall motion along high perpendicular anisotropy multilayers: The role of the Rashba field, the spin Hall effect, and the Dzyaloshinskii-Moriya interaction. *Appl. Phys. Lett.*, 103:072406, 2013.
 - [151] A. Brataas and K. M. D. Hals. Spin-orbit torques in action. *Nat. Nanotechnol.*, 9:86, 2014.
 - [152] A. Thiaville, S. Rohart, E. Jué, V. Cros, and A. Fert. Dynamics of Dzyaloshinskii domain walls in ultrathin magnetic films. *Europhys. Lett.*, 100:57002, 2012.
 - [153] P. M. Haney, H.-W. Lee, K.-J. Lee, A. Manchon, and M. D. Stiles. Current induced torques and interfacial spin-orbit coupling: Semiclassical modeling. *Phys. Rev. B*, 87:174411, 2013.
 - [154] K.-S. Ryu, S.-H. Yang, L. Thomas, and S. S. P. Parkin. Chiral spin torque arising from proximity-induced magnetization. *Nat. Commun.*, 5:3910, 2014.
 - [155] P. P. J. Haazen, E. Murè, J. H. Franken, R. Lavrijsen, H. J. M. Swagten, and B. Koopmans. Domain wall depinning governed by the spin Hall effect. *Nat. Mater.*, 12:299, 2013.
 - [156] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani, and H. Ohno. Layer thickness dependence of the current-induced effective field vector in Ta|CoFeB|MgO. *Nat. Mater.*, 12:240, 2013.
 - [157] K. Garello, I. Mihai Miron, C. O. Avci, F. Freimuth, Y. Mokrousov, S. Blügel,

- S. Auffret, O. Boulle, G. Gaudin, and P. Gambardella. Symmetry and magnitude of spin-orbit torques in ferromagnetic heterostructures. *Nat. Nanotechnol.*, 8:587, 2013.
- [158] A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio. Skyrmions on the track. *Nat. Nanotechnol.*, 8:152, 2013.
- [159] A. Crépieux and C. Lacroix. Dzyaloshinsky-Moriya interactions induced by symmetry breaking at a surface. *J. Magn. Magn. Mater.*, 182:341, 1998.
- [160] S. Rohart and A. Thiaville. Skyrmion confinement in ultrathin film nanostructures in the presence of Dzyaloshinskii-Moriya interaction. *Phys. Rev. B*, 88:184422, 2013.
- [161] A. Fert and P. M. Levy. Role of anisotropic exchange interactions in determining the properties of spin-glasses. *Phys. Rev. Lett.*, 44:1538, 1980.
- [162] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal. *Nature*, 465:901, 2010.
- [163] A. Fert. Magnetic and transport properties of metallic multilayers. *Mater. Sci. Forum*, 59&60:439, 1990.
- [164] M. Bode, M. Heide, K. von Bergmann, P. Ferriani, S. Heinze, G. Bihlmayer, A. Kubetzka, O. Pietzsch, S. Blügel, and R. Wiesendanger. Chiral magnetic order at surfaces driven by inversion asymmetry. *Nature*, 447:190, 2007.
- [165] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka, and R. Wiesendanger. Writing and deleting single magnetic skyrmions. *Science*, 341:636, 2013.
- [166] G. Chen, T. Ma, A. T. N'Diaye, H. Kwon, C. Won, Y. Wu, and A. K. Schmid. Tailoring the chirality of magnetic domain walls by interface engineering. *Nat. Commun.*, 4:2671, 2013.
- [167] J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, M. Yamanouchi, and H. Ohno. Interface control of the magnetic chirality in CoFeB|MgO heterostructures with heavy metal underlayers. *Nat. Commun.*, 5:4655, 2014.
- [168] A. Hrabec, N. A. Porter, A. Wells, M. J. Benitez, G. Burnell, S. McVitie, D. McGrouther, T. A. Moore, and C. H. Marrows. Measuring and tailoring the dzyaloshinskii-moriya interaction in perpendicularly magnetized thin films. *Phys. Rev. B*, 90:020402, 2014.
- [169] N. Vernier, J.-P. Adam, S. Eimer, G. Agnus, T. Devolder, T. Hauet, B. Ocker, F. Garcia, and D. Ravelosona. Measurement of magnetization using domain compressibility in CoFeB films with perpendicular anisotropy. *Appl. Phys. Lett.*, 104:122404, 2014.
- [170] L. M. C. Pereira, J. P. Araújo, M. J. Van Bael, K. Temst, and A. Vantomme. Practical limits for detection of ferromagnetism using highly sensitive magnetometry techniques. *J. Phys. D Appl. Phys.*, 44:215001, 2011.
- [171] T. Devolder, P.-H. Ducrot, J.-P. Adam, I. Barisic, N. Vernier, Joo-Von Kim, B. Ockert, and D. Ravelosona. Damping of $\text{Co}_x\text{Fe}_{80-x}\text{B}_{20}$ ultrathin films with perpendicular magnetic anisotropy. *Appl. Phys. Lett.*, 102:022407, 2013.
- [172] M. Yamanouchi, A. Jander, P. Dhagat, S. Ikeda, F. Matsukura, and H. Ohno. Domain structure in CoFeB thin films with perpendicular magnetic anisotropy. *IEEE*

- Magn. Lett.*, 2:3000304, 2011.
- [173] C. Eyrych, W. Huttema, M. Arora, E. Montoya, F. Rashidi, C. Burrowes, B. Kardasz, E. Girt, B. Heinrich, O. N. Mryasov, M. From, and O. Karis. Exchange stiffness in thin film Co alloys. *J. Appl. Phys.*, 111:07C919, 2012.
 - [174] S. Pizzini, J. Vogel, S. Rohart, L. D. Buda-Prejbeanu, E. Jué, O. Boulle, I. M. Miron, C. K. Safeer, S. Auffret, G. Gaudin, and A. Thiaville. Chirality-induced asymmetric magnetic nucleation in Pt/Co/AlO_x ultrathin microstructures. *Phys. Rev. Lett.*, 113:047203, 2014.
 - [175] <http://www.sciencemag.org/content/suppl/2014/06/18/344.6190.1366.DC1/>.
 - [176] A. Schwarz, M. Liebmann, U. Kaiser, R. Wiesendanger, T. Noh, and D. Kim. Visualization of the Barkhausen effect by magnetic force microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 92:077206, 2004.
 - [177] A. Chizhik, A. Stupakiewicz, A. Maziewski, A. Zhukov, J. Gonzalez, and J. M. Blanco. Direct observation of giant Barkhausen jumps in magnetic microwires. *Appl. Phys. Lett.*, 97:012502, 2010.
 - [178] J. Heinen, D. Hinzke, O. Boulle, G. Malinowski, H. J. M. Swagten, B. Koopmans, C. Ulysse, G. Faini, and M. Kläui. Extraction of the spin torque non-adiabaticity from thermally activated domain wall hopping. *Appl. Phys. Lett.*, 99:242501, 2011.
 - [179] J. A. J. Burgess, A. E. Fraser, F. F. Sani, D. Vick, B. D. Hauer, J. P. Davis, and M. R. Freeman. Quantitative magneto-mechanical detection and control of the Barkhausen effect. *Science*, 339:1051, 2013.
 - [180] G. Kucsko, P. C. Maurer, N. Y. Yao, M. Kubo, H. J. Noh, P. K. Lo, H. Park, and M. D. Lukin. Nanometre-scale thermometry in a living cell. *Nature*, 500:54, 2013.
 - [181] D. M. Toyli, C. F. de las Casas, D. J. Christle, V. V. Dobrovitski, and D. D. Awschalom. Fluorescence thermometry enhanced by the quantum coherence of single spins in diamond. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 110:8417, 2013.
 - [182] P. Neumann, I. Jakobi, F. Dolde, C. Burk, R. Reuter, G. Waldherr, J. Honert, T. Wolf, A. Brunner, and J. H. Shim. High-precision nanoscale temperature sensing using single defects in diamond. *Nano Lett.*, 13:2738, 2013.
 - [183] V. M. Acosta, E. Bauch, A. Jarmola, L. J. Zipp, M. P. Ledbetter, and D. Budker. Broadband magnetometry by infrared-absorption detection of nitrogen-vacancy ensembles in diamond. *Appl. Phys. Lett.*, 97:174104, 2010.
 - [184] M. W. Doherty, V. M. Acosta, A. Jarmola, M. S. J. Barson, N. B. Manson, D. Budker, and L. C. L. Hollenberg. Temperature shifts of the resonances of the NV⁻ center in diamond. *Phys. Rev. B*, 90:041201, 2014.
 - [185] A. Lamperti, S.-M. Ahn, B. Ocker, R. Mantovan, and D. Ravelosona. Interface width evaluation in thin layered CoFeB/MgO multilayers including Ru or Ta buffer layer by X-ray reflectivity. *Thin Solid Films*, 533:79, 2013.
 - [186] A.I. Shames, A.M. Panich, W. Kempniński, A.E. Alexenskii, M.V. Baidakova, A.T. Dideikin, V.Yu. Osipov, V.I. Siklitski, E. Osawa, M. Ozawa, and A. Y. Vul'. Defects and impurities in nanodiamonds : EPR , NMR and TEM study. *J. Phys. Chem. Solids*, 63:1993, 2002.
 - [187] M. Dubois, K. Gue, E. Petit, N. Batisse, N. Komatsu, P. Pirotte, and F. Masin. Solid-state NMR study of nanodiamonds produced by the detonation technique. *J.*

- Phys. Chem. C*, 113:10371, 2009.
- [188] L. B. Casabianca, A. I. Shames, A. M. Panich, O. Shenderova, and L. Frydman. Factors affecting DNP NMR in polycrystalline diamond samples. *J. Phys. Chem. C*, 115:19041, 2011.
 - [189] A. I. Shames, V. Y. Osipov, A. E. Aleksenskiy, E. Ōsawa, and A. Y. Vul'. Locating inherent unpaired orbital spins in detonation nanodiamonds through the targeted surface decoration by paramagnetic probes. *Diamond Relat. Mater.*, 20:318, 2011.
 - [190] A. M. Panich and G. B. Furman. Nuclear spin-lattice relaxation and paramagnetic defects in carbon nanomaterials. *Diamond Relat. Mater.*, 23:157, 2012.
 - [191] J. Tisler, G. Balasubramanian, B. Naydenov, R. Kolesov, B. Grotz, R. Reuter, J.-P. Boudou, P. A. Curmi, M. Sennour, A. Thorel, M. Bo, K. Aulenbacher, R. Erdmann, P. R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup. Fluorescence and spin properties of defects in single digit nanodiamonds. *ACS Nano*, 3:1959, 2009.
 - [192] A. M. Panich and A. I. Shames. Nuclear spin-lattice relaxation in nanocarbon compounds caused by adsorbed oxygen. *Diamond Relat. Mater.*, 20:201, 2011.
 - [193] S. B. Orlinskii, R. S. Bogomolov, A. M. Kiyamova, B. V. Yavkin, G. M. Mamin, S. Turner, G. Van Tendeloo, A. A. Shiryaev, I. I. Vlasov, and O. Shenderova. Identification of substitutional nitrogen and surface paramagnetic centers in nanodiamond of dynamic synthesis by electron paramagnetic resonance. *Nanosci. Nanotechnol. Lett.*, 3:63, 2011.
 - [194] C. Bradac, T. Gaebel, N. Naidoo, M. J. Sellars, J. Twamley, L. J. Brown, A. S. Barnard, T. Plakhotnik, A. V. Zvyagin, and J. R. Rabreau. Observation and control of blinking nitrogen-vacancy centres in discrete nanodiamonds. *Nat. Nanotechnol.*, 5:345, 2010.
 - [195] P. Caravan. Strategies for increasing the sensitivity of gadolinium based MRI contrast agents. *Chem. Soc. Rev.*, 35:512, 2006.
 - [196] S. Koenig. From the relaxivity of $\text{Gd}(\text{DTPA})^{2-}$ to everything else. *Magn. Reson. Med.*, 22:183, 1991.
 - [197] D. Kruk, J. Kowalewski, and P.-O. Westlund. Nuclear and electron spin relaxation in paramagnetic complexes in solution: effects of the quantum nature of molecular vibrations. *J. Chem. Phys.*, 121:2215, 2004.
 - [198] S. Steinert, F. Ziem, L. T. Hall, A. Zappe, M. Schweikert, N. Götz, A. Aird, G. Balasubramanian, L. Hollenberg, and J. Wrachtrup. Magnetic spin imaging under ambient conditions with sub-cellular resolution. *Nat. Commun.*, 4:1607, 2013.
 - [199] A. O. Sushkov, N. Chisholm, I. Lovchinsky, M. Kubo, P. K. Lo, S. D. Bennett, D. Hunger, A. Akimov, R. L. Walsworth, H. Park, and M. D. Lukin. All-optical sensing of a single-molecule electron spin. *Nano Lett.*, 14:6443, 2014.
 - [200] A. Ermakova, G. Pramanik, J.-M. Cai, G. Algara-Siller, U. Kaiser, T. Weil, Y.-K. Tzeng, H. C. Chang, L. P. McGuinness, M. B. Plenio, B. Naydenov, and F. Jelezko. Detection of a few metallo-protein molecules using color centers in nanodiamonds. *Nano Lett.*, 13:3305, 2013.
 - [201] S. Kaufmann, D. A. Simpson, L. T. Hall, V. Perunicic, P. Senn, S. Steinert, L. P. McGuinness, B. C. Johnson, T. Ohshima, F. Caruso, J. Wrachtrup, R. E. Scholten, P. Mulvaney, and L. C. L. Hollenberg. Detection of atomic spin labels in a lipid

- bi-layer using a single-spin nanodiamond probe. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 110:10894, 2013.
- [202] F. C. Ziem, N. S. Götz, A. Zappe, S. Steinert, and J. Wrachtrup. Highly sensitive detection of physiological spins in a microfluidic device. *Nano Lett.*, 13:4093, 2013.
 - [203] L. T. Hall, J. H. Cole, C. D. Hill, and L. C. L. Hollenberg. Sensing of fluctuating nanoscale magnetic fields using nitrogen-vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 103:220802, 2009.
 - [204] A. Laraoui, J. S. Hodges, and C. A. Meriles. Magnetometry of random ac magnetic fields using a single nitrogen-vacancy center. *Appl. Phys. Lett.*, 97:143104, 2010.
 - [205] M. Loretz, S. Pezzagna, J. Meijer, and C. L. Degen. Nanoscale nuclear magnetic resonance with a 1.9-nm-deep nitrogen-vacancy sensor. *Appl. Phys. Lett.*, 104:033102, 2014.
 - [206] M. S. Grinolds, M. Warner, K. de Greve, Y. Dovzhenko, L. Thiel, R. L. Walsworth, S. Hong, P. Maletinsky, and A. Yacoby. Subnanometre resolution in three-dimensional magnetic resonance imaging of individual dark spins. *Nat. Nanotechnol.*, 9:279, 2014.
 - [207] D. Le Sage, K. Arai, D. R. Glenn, S. J. DeVience, L. M. Pham, L. Rahn-Lee, M. D. Lukin, A. Yacoby, A. Komeili, and R. L. Walsworth. Optical magnetic imaging of living cells. *Nature*, 496:486, 2013.
 - [208] J. Sampaio, V. Cros, S. Rohart, A. Thiaville, and A. Fert. Nucleation, stability and current-induced motion of isolated magnetic skyrmions in nanostructures. *Nat. Nanotechnol.*, 8:839, 2013.
 - [209] J. W. McClure. Diamagnetism of graphite. *Phys. Rev.*, 104:666, 1956.

Publications

1. L. Rondin*, **JPT***, P. Spinicelli, C. Dal Savio, K. Karrai, G. Dantelle, A. Thiaville, S. Rohart, J.-F. Roch, and V. Jacques. Nanoscale magnetic field mapping with a single spin scanning probe magnetometer. *Appl. Phys. Lett.*, 100:153118, 2012. [cf. § 2.2, § 2.3]
2. **JPT**, L. Rondin, P. Spinicelli, M. Chipaux, T. Debuisschert, J.-F. Roch, and V. Jacques. Magnetic-field-dependent photodynamics of single NV defects in diamond: An application to all-optical magnetic imaging. *New J. Phys.*, 14:103033, 2012. [cf. § 1.4, § 2.4]
3. L. Rondin*, **JPT***, S. Rohart, A. Thiaville, T. Hingant, P. Spinicelli, J.-F. Roch, and V. Jacques. Stray-field imaging of magnetic vortices with a single diamond spin. *Nat. Commun.*, 4:2279, 2013. [cf. § 2.3, § 2.4]
4. **JPT**, T. Hingant, L. Rondin, A. Cavaillès, L. Mayer, G. Dantelle, T. Gacoin, J. Wrachtrup, J.-F. Roch, and V. Jacques. Spin relaxometry of single nitrogen-vacancy defects in diamond nanocrystals for magnetic noise sensing. *Phys. Rev. B*, 87:235436, 2013. [cf. § 4.2, § 4.3]
5. **JPT**, T. Hingant, L. Rondin, S. Rohart, A. Thiaville, J.-F. Roch, and V. Jacques. Quantitative stray field imaging of a magnetic vortex core. *Phys. Rev. B*, 88:214408, 2013. [cf. § 2.3]
6. **JPT**, T. Hingant, L. Rondin, S. Rohart, A. Thiaville, G. Gaudin, J.-F. Roch, and V. Jacques. Nitrogen-vacancy-center imaging of bubble domains in a 6-Å film of cobalt with perpendicular magnetization. *J. Appl. Phys.*, 115:17D501, 2014. [cf. § 3.3]
7. L. Rondin, **JPT**, T. Hingant, J.-F. Roch, P. Maletinsky, and V. Jacques. Magnetometry with NV centers in diamond. *Rep. Prog. Phys.*, 77:056503, 2014. [cf. § 1.2, § 1.3]
8. M. Lesik, **JPT**, A. Tallaïre, J. Achard, V. Mille, A. Gicquel, J.-F. Roch, and V. Jacques. Perfect preferential orientation of nitrogen-vacancy defects in a synthetic diamond sample. *Appl. Phys. Lett.*, 104:113107, 2014.
9. **JPT**, T. Hingant, J.-V. Kim, L. Herrera Diez, J.-P. Adam, K. Garcia, J.-F. Roch, S. Rohart, A. Thiaville, D. Ravelosona, and V. Jacques. Nanoscale imaging and control of domain wall hopping with a nitrogen-vacancy center microscope. *Science*, 344:1366, 2014. [cf. § 3.4]
10. **JPT***, T. Hingant*, J. L. Martinez, S. Rohart, A. Thiaville, L. Herrera Diez, K. Garcia, J.-P. Adam, J.-V. Kim, J.-F. Roch, I. M. Miron, G. Gaudin, L. Vila, B. Ockert, D. Ravelosona, and V. Jacques. The nature of domain walls in ultrathin ferromagnets revealed by scanning nanomagnetometry. *preprint arXiv:1410.1313*, 2014. [cf. § 3.3]

*Contributions égales.

Résumé

La capacité à cartographier le champ magnétique à l'échelle nanométrique serait un atout crucial non seulement pour l'étude des matériaux magnétiques et de certains phénomènes de la matière condensée, mais aussi pour des études fondamentales en biologie. Cette thèse décrit la réalisation d'un microscope de champ magnétique d'un genre nouveau, qui promet une résolution spatiale ultime de quelques nanomètres. Ce microscope est basé sur le défaut azote-lacune du diamant, ou "centre NV", dont les propriétés quantiques peuvent être exploitées pour en faire un magnétomètre ultrasensible et de taille atomique.

Ce mémoire est divisé en quatre chapitres. Le premier chapitre est dédié à la description des principes de fonctionnement de la magnétométrie à centre NV. Puis nous détaillerons, dans le deuxième chapitre, la réalisation d'un "microscope à centre NV", qui consiste essentiellement en un microscope à force atomique sur la pointe duquel un nanocristal de diamant est attaché. Nous testerons le microscope en imageant le champ de fuite généré par des structures vortex dans des microplots ferromagnétiques. Dans le troisième chapitre, nous appliquerons le microscope à centre NV à l'étude de parois de domaine dans des couches ferromagnétiques ultraminces. Ces objets magnétiques, très difficiles à observer par les techniques conventionnelles, pourraient servir à la réalisation de nouvelles mémoires magnétiques à basse consommation d'énergie. Enfin, nous verrons dans le dernier chapitre que le centre NV peut également servir à détecter le bruit magnétique produit par des molécules paramagnétiques, ouvrant ainsi de nouvelles opportunités en biologie pour l'étude de processus cellulaires.

Abstract

The ability to map the magnetic field at the nanometer scale would be a crucial advance not only for the study of magnetic materials and some condensed matter phenomena, but also for fundamental studies in biology. This thesis describes the realisation of a magnetic field microscope of a new kind, which promises a spatial resolution down to a few nanometres. This microscope is based on the nitrogen-vacancy defect in diamond, or "NV centre", whose quantum properties can be harnessed to make an ultrasensitive, atomic-size magnetometre.

This manuscript is divided into four chapters. The first chapter is devoted to introducing the basics of NV centre based magnetometry. We will then describe in detail, in the second chapter, the realisation of an "NV centre microscope", which consists essentially in an atomic force microscope on the tip of which a diamond nanocrystal is grafted. We will test the microscope by imaging the stray field generated by vortex structures in ferromagnetic microdots. In the third chapter, we will apply the NV centre microscope to the study of domain walls in ultrathin ferromagnets. These magnetic objects, which are very difficult to observe with conventional techniques, could be used to form novel magnetic memory devices with low energy consumption. Finally, we will see in the fourth chapter that the NV centre can also be used to detect the magnetic noise produced by paramagnetic molecules, thus opening new opportunities in biology for the study of cellular processes.